

UNIVERSITE SAAD DAHLEB DE BLIDA

Faculté des Sciences de l'Ingénieur
Département de Mécanique

MEMOIRE DE MAGISTER

Spécialité : Energétique

ETUDE D'UN SYSTEME DE PILE A COMBUSTIBLE PEMFC POUR LA PROPULSION D'UN VEHICULE

Par

SLIMANI Ali

Devant le jury composé de

Y. BENKHEDDA	Professeur, U. de Blida	Président
B. BOUMEDDANE	Maître de Conférence, U. de Blida	Examineur
M. MERZOUK	Maître de Conférence, U. de Blida	Examineur
M. BOUGHEDAOU	Chargé de Cours, U. de Blida	Examineur
N. AIT MESSAOUDENE	Professeur, U. de Blida	Rapporteur

Blida, 2007

DEDICACE

Je dédie ce modeste travail à :

Mes très chers parents pour leur soutien, dévouement et encouragement qu'ils ne cessent pas de me prodiguer à chaque instant de mon existence.

Mes frères : Younes et Mohamed Cherif.

Mes sœurs : Nabila, Anissa et Sarah.

Mes amis : M. Sahi, R. Bait, N. Aichaoui, A. Abdelli, F. Benchaouche, M. Benhassine, N. Kherif, A. Menguellati, T. Zeggane, M. Guiatni, Saadi, Hichem, A. Tirache, S. Kebichi, O. Rahmani, R. et T. Mebarki...

Mes collègues de travail : M. Djoudi, A. Amiri, O. Akeb, B. Ferhat...

Ainsi qu'à toutes les personnes qui de près ou de loin à leur manière ont contribué à la réalisation de ce mémoire.

REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier le tout puissant pour m'avoir donné la force, la volonté et montré le droit chemin.

Qu'il me soit permis d'adresser tous mes profonds remerciements et gratitude à mon promoteur M. N. AIT MESSAOUDENE, Professeur à l'Université de Blida, pour m'avoir cordialement dirigé et soutenu. Sa confiance, disponibilité et encouragements ne m'ont jamais manqué tout le long de ce travail. Je lui saurai donc gré d'accepter ma parfaite considération pour sa patience et les précieux et judicieux conseils fructueusement prodigués.

Je tiens à exprimer ma respectueuse reconnaissance à :

M. Y. BENKHEDDA, Professeur à l'Université Saad Dahleb de Blida, de l'honneur qu'il me fait de bien vouloir assurer la présidence du jury ;

M. B. BOUMEDDANE, Maître de Conférence à l'Université de Blida, et M. M. MERZOUK, Maître de Conférence à l'Université Saad Dahleb, ainsi que M. M. BOUGHEDAOU, Chargé de Cours à l'Université de Blida, d'avoir consacré de leur temps utile à l'examen et l'évaluation de cette étude et bien voulu participer au jury, montrant ainsi l'intérêt qu'ils portent à mon travail.

Mes vifs remerciements s'adressent également à toutes personnes ayant répondu à ma demande de documentation : M. R. LUBIN, Agent de l'information technique au Centre de la Technologie de l'Energie de CANMET (Canada), M. G. CLAUDET, Conseiller Scientifique et Directeur de Recherche au CEA de Grenoble (France), M. S. PAYSANT de L'Association Française de l'Hydrogène (Paris, France), M. D. CORGIER, Chef du secteur chaînes de tractions électriques à la Direction des Etudes d'Irisbus (Vénissieux, France), et Mme. F. L. DARKRIM, Chercheur au Laboratoire d'Ingénierie des Matériaux du CNRS (France). Qu'ils trouvent ici l'expression de ma sincère reconnaissance pour leur collaboration amicale.

Il serait long de les citer tous par leurs noms, enseignants et personnel de l'université de Blida. Tous, d'une façon ou d'une autre, ont contribué à ma formation durant mon cursus.

Enfin, je ne saurais oublier mes amis et collègues de travail pour l'assistance et l'aide morale et qui m'ont apporté lors des moments difficiles avant la mise au point de ce mémoire.

RESUME

À la recherche d'alternative aux moteurs à combustion interne responsables de la pollution atmosphérique dans la circulation routière, la pile à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC) se présente comme la candidate la plus prometteuse équipant les véhicules électriques du futur.

Le présent travail vise à étudier le potentiel énergétique d'un système de pile à combustible PEMFC, intégré dans une chaîne de traction électrique « Full power » d'un véhicule particulier. Pour générer sa courbe caractéristique, un modèle de simulation du comportement électrique de la cellule de pile PEMFC a été élaboré, incluant ses différents types de polarisation. L'examen de l'impact des diverses conditions opératoires sur les performances de la cellule, a permis de lui spécifier un point de fonctionnement nominal. L'évaluation des performances routières et des besoins en combustible du véhicule à pile PEMFC, sur un cycle de conduite normalisé, est effectuée par la mise au point d'un modèle mathématique, permettant de dimensionner les principaux éléments de la chaîne de motorisation. Il s'agit, notamment, de la pile PEMFC et du réservoir de carburant. Les résultats indiquent que les spécifications électriques de la pile à combustible répondent parfaitement aux exigences imposées par les régimes de conduite variables. Par ailleurs, le rendement global du véhicule considéré reste constamment supérieur à 32 % pendant tout le cycle.

Mots Clefs :

PEMFC, hydrogène, courbe caractéristique, véhicule à pile à combustible, cycle de conduite.

ABSTRACT

In the search of alternative to the internal combustion engines responsible for the air pollution in the road traffic, the fuel cell with exchanging membrane of protons (PEMFC) is presented as the most promising candidate equipping the the futur electric vehicles.

This work aims at studying the energetic potential of a polymer electrolyte membrane fuel cell system, integrated in a « full power » electric drive train of a particular vehicle. To generate its characteristic curve, a simulation model of the PEM cell electric behavior was elaborated, including its various types of polarization. The examination of the impact of the different operating conditions on the cell performances allows to specify its point of nominal operation. The evaluation of the road performances and the requirements out of fuel for the PEM fuel cell propelled vehicle, on a standardized driving cycle, is carried out by the development of a mathematical model, making it possible to dimension the principal elements of the chain of motorization. It is, in particular, of fuel cell stack and the fuel tank. The results indicate that the electric specifications of the fuel cell fulfill perfectly the requirements imposed by the variable driving modes. In addition, the total output of the considered vehicle constantly remains higher than 32 % during all the cycle.

Key Words:

PEMFC, hydrogen, characteristic curve, fuel cell vehicle, driving cycle

ملخص

بحثنا عن بديل للمحركات ذات الاحتراق الداخلي المسؤولة عن تلوث الجو جراء حركة المرور، فان البطارية ذات الوقود بعشاء مبادل للبروتونات تظهر كمرشح واعد لتجهيز المركبات الكهربائية في المستقبل. يهدف هذا البحث لدراسة الكمون الطاقوي لنظام بطارية ذات وقود، مدجة في سلسلة الجراالكهربائي "بالطاقة العظمى" لمركبة خاصة. للحصول على المنحنى المميز لخلية بطارية ذات وقود، تم انشاء نموذج محاكاة لسلوكها الكهربائي، مع اعتبار مختلف انواع الاستقطاب الناتجة. ان دراسة تأثير مختلف ظروف التشغيل على اداء الخلية، مكنت من تحديد نقطة عمل نظرية خاصة بها. تقييم الاداء والاحتياجات من الوقود لمركبة مدفوعة ببطارية ذات وقود، على دورة سياقة معترف بها، يقوم على أساس تطوير نموذج رياضي يمكن من حساب ابعاد العناصر الرئيسية لسلسلة التحريك. وعلى وجه الخصوص، البطارية ذات الوقود وكذا خزان الوقود. وتبين النتائج أن المواصفات الكهربائية للبطارية ذات الوقود تلبي كافة المتطلبات التي تفرضها أساليب السياقة المتغيرة. وبالإضافة الى ذلك، فان المردود الكلي الناتج من المركبة المعتبرة يفوق نسبة 32 ٪ خلال كل الدورة.

TABLE DES MATIERES

RESUME	
REMERCIEMENTS	
TABLE DES MATIERES	
LISTE DES ILLUSTRATIONS, GRAPHIQUES ET TABLEAUX.....	
INTRODUCTION	
1. ÉTUDE DE LA CHAINE ENERGETIQUE DE L'HYDROGENE.....	14
1. 1 Etat et perspectives de recherche sur l'énergie	14
1. 2 Propriétés physicochimiques de l'hydrogène.....	17
1. 3 Grandes filières de production de l'hydrogène	19
1. 4 Stockage de l'hydrogène	30
1. 5 Distribution et transport de l'hydrogène	32
1. 6 Utilisation de l'hydrogène	35
2. GENERALITES SUR LES PILES À COMBUSTIBLE.	36
2. 1 Historique sur les piles à combustible.....	36
2. 2 Principe de fonctionnement.....	39
2. 3 Caractéristiques des piles à combustible	41
2. 4 Différents types de piles à combustible.....	44
2. 5 Domaines d'application des piles à combustible	54
3. ANALYSE D'UNE PILE PEMFC ET DE SES AUXILIAIRES PERIPHERIQUES..	59
3. 1 La technologie PEMFC.....	59
3. 1.1 Structure et conception.....	59
3. 1.2 Issues techniques	66
3. 2 Systèmes basés sur des piles PEMFC	69
3. 2.1 En amont de la pile.....	70
3. 2.2 En aval de la pile	74
3. 2.3 Gestion de l'électricité produite	77
3. 2.4 Gestion de la chaleur produite.....	79
3. 2.5 Générateurs auxiliaires	80
3. 2.6 Régulation et commande du système et de la pile	81
4. MODELISATION ET PERFORMANCES D'UNE PILE «PEMFC».	85
4. 1 Modèles d'évaluation des systèmes de PEMFC	85
4. 2 Modélisation d'une cellule élémentaire PEMFC	91
4. 2.1 Hypothèses du modèle	92
4. 2.2 Thermodynamique des piles à combustible	92
4. 2.3 Performances idéales et potentiel réversible	94

4. 2.4	Performances réelles	99
4. 2.5	Rapports stœchiométriques des réactifs	105
4. 2.6	Puissance électrique de la cellule	107
4. 2.7	Tension et puissance de la pile PEMFC	108
4. 2.8	Rendement thermique de la cellule	108
4. 2.9	Choix du point nominal de fonctionnement.....	111
4. 2.10	Rendement global du système pile à combustible PEMFC	113
5.	MODELISATION D'UN VEHICULE ANIME PAR UNE PILE «PEMFC»	116
5. 1	Configurations des vehicules à piles PEMFC.....	116
5. 2	Cycles de conduite normalisés	118
5. 3	Critères de performance pour les vehicules de taille moyenne	120
5. 4	Modelisation d'un vehicule propulsé par PAC.....	121
5. 4.1	Choix du type de véhicule.....	122
5. 4.2	Choix du cycle standard de conduite	123
5. 4.3	Estimation de la masse totale du véhicule à piles PEMFC.....	124
5. 4.4	Consommation de carburant et résistance de conduite	125
5. 4.5	Puissance totale exigée par le vehicule	127
5. 4.6	Rendement global du système de propulsion à PAC.....	129
5. 4.7	Calcul des dimensions de la pile PEMFC.....	131
5. 4.8	Calcul du débit de carburant consommé	132
5. 4.9	Détermination de la taille du réservoir de carburant.....	132
6.	CALCUL NUMERIQUE : RESULTATS ET INTERPRETATIONS	134
6. 1	Procédure de programmation	135
6. 1.1	Structure du programme « PEMFC.FOR »	135
6. 1.2	Structure du programme « VEHICULE.FOR ».....	136
6. 2	Résultats graphiques des simulations	138
6. 2.1	Résultats du modèle de cellule de pile à combustible PEMFC	138
6. 2.2	Performances de la pile à combustible PEMFC alimentant le véhicule.....	149
6. 2.3	Résultats du modèle de véhicule à pile à combustible PEMFC.....	154
	CONCLUSION	164
	REFERENCES	
	APPENDICES.....	

LISTE DES ILLUSTRATIONS, GRAPHIQUES ET TABLEAUX

Figure 1.1	Différentes voies de production de l'hydrogène	20
Figure 1.2	Réaction de vaporeformage du méthanol	24
Figure 1.3	Oxydation partielle d'un hydrocarbure en hydrogène	28
Figure 1.4	Logistique de distribution du gaz d'hydrogène	33
Figure 1.5	Transport des bouteilles d'hydrogène gazeux	34
Figure 2.1	La pile à combustible de W. GROVE	36
Figure 2.2	Schéma de principe d'une pile à combustible (type PEMFC)	40
Figure 2.3	Assemblage de cellules dans un module de pile à combustible	41
Figure 2.4	Les différents composants d'une pile à électrolyte solide	47
Figure 2.5	Les quatre familles technologiques des piles SOFC	51
Figure 3.1	Composition chimique du Nafion avec ses trois régions distinctes	60
Figure 3.2	Mouvement des protons le long d'une membrane hydratée	60
Figure 3.3	Ensemble membrane électrodes	61
Figure 3.4	Couche de coexistence des trois phases au niveau de l'électrode	62
Figure 3.5	Deux structures différentes de la MEA	63
Figure 3.6	Deux nouveaux concepts de plaques bipolaires	64
Figure 3.7	Quelques géométries de base des canaux de gaz	65
Figure 3.8	Principaux phénomènes au sein de la cellule PEMFC	66
Figure 3.9	Schéma fonctionnel d'un groupe électrogène à pile PEMFC	70
Figure 3.10	Configurations d'alimentation en combustible à bord d'un VEH	71
Figure 3.11	Système de stockage et d'alimentation en H ₂ pour une PEMFC	72
Figure 3.12	Schéma du sous système d'air d'alimentation	73
Figure 3.13	Schéma de principe de purge d'hydrogène	75
Figure 3.14	Schéma de principe de l'échappement d'hydrogène	75
Figure 3.15	Schéma de principe de la récupération d'hydrogène imbrûlé	76
Figure 3.16	Le système Daimler Chrysler de pile à combustible à méthanol	77
Figure 3.17	Architecture électrique du trolleybus CRISTALIS à PEMFC	78
Figure 3.18	Système de refroidissement de la pile PEMFC	79
Figure 4.1	Modèles de PEMFC disponibles en littérature et commercialement	88

Figure 4.2	Courbe de polarisation avec les surtensions d'une cellule PEMFC	100
Figure 4.3	Deux positions du point nominal d'opération d'une cellule PEMFC	112
Figure 4.4	Rendements des différents composants du système pile PEMFC	113
Figure 5.1	Schéma de base d'un véhicule typique à pile PEMFC	117
Figure 5.2	Profil de vitesse du procédé de test fédéral, FTP	119
Figure 5.3	Profil de vitesse du cycle de route, HWY	120
Figure 5.4	Profil de vitesse du nouveau cycle européen de conduite, NEDC	123
Figure 5.5	Diagramme d'un modèle de véhicule avec les résistances de conduite	126
Figure 5.6	Efficacités des composants du système véhicule à pile PEMFC	129
Figure 6.1	Courbe de polarisation de la cellule PEMFC	138
Figure 6.2	Contributions des diverses polarisations au potentiel de la cellule	139
Figure 6.3	Effet de la pression partielle de l'hydrogène sur le potentiel de cellule	140
Figure 6.4	Influence de la pression totale à la cathode sur la tension de la cellule	141
Figure 6.5	Influence de la température de la cellule sur son potentiel	142
Figure 6.6	Effet de l'épaisseur de la membrane sur la tension de cellule	143
Figure 6.7	Effet de l'humidité de la membrane sur le potentiel de cellule	143
Figure 6.8	Variations de la tension et de la densité de puissance en fonction de la densité du courant électrique de la cellule	144
Figure 6.9	Influence de la température de cellule sur sa densité de puissance	146
Figure 6.10	Influence de la pression totale cathodique sur la densité de puissance	146
Figure 6.11	Efficacité thermique de la cellule selon sa densité du courant	147
Figure 6.12	Effet de la température de cellule sur le rendement thermique	148
Figure 6.13	Effet de la pression totale à la cathode sur le rendement thermique	149
Figure 6.14	Courbe caractéristique de la pile PEMFC alimentant le véhicule	150
Figure 6.15	Variations des puissances électriques brute et nette de la pile en fonction du courant généré	151
Figure 6.16	Variations du rendement de pile et de son système selon le courant	153
Figure 6.17	Variations des débits massiques totaux des gaz réactifs admis selon l'intensité du courant tiré de la pile	154
Figure 6.18	Profils de vitesse et d'accélération du véhicule en fonction du temps au cours du cycle de conduite «NEDC»	155
Figure 6.19	Contributions des différentes résistances de conduite à la puissance propulsive du véhicule	155
Figure 6.20	Puissances requises pour surmonter les résistances de conduite durant le trafic urbain du parcours «NEDC»	156

Figure 6.21	Puissances nécessaires pour vaincre les résistances de conduite du trafic de route au cycle «NEDC»	157
Figure 6.22	Evolution temporelle de la puissance totale requise par le véhicule durant le cycle de conduite «NEDC»	158
Figure 6.23	Variation dans le temps de la puissance électrique délivrée par la pile PEMFC au cours du cycle «NEDC»	159
Figure 6.24	Evolution temporelle de la tension et du courant débité par la pile PEMFC durant le cycle de conduite	161
Figure 6.25	Variation du rendement global de véhicule le long du cycle «NEDC»	162
Figure 6.26	Variation temporelle du débit massique d'hydrogène consommé au cours du cycle «NEDC»	162
Tableau 1. 1	Répartition et consommation mondiale d'énergie primaire	15
Tableau 1. 2	Réserves mondiales d'énergie primaires fossiles	15
Tableau 1. 3	Principales caractéristiques physicochimiques de l'hydrogène	18
Tableau 1. 4	Caractéristiques d'inflammation de l'hydrogène et du propane	19
Tableau 1. 5	Composition du gaz de synthèse obtenu par vaporeformage	25
Tableau 1. 6	Oxydation partielle pour les technologies Texaco et Shell	27
Tableau 1. 7	Quelques résultats sur l'adsorption de H ₂ dans les nanotubes	32
Tableau 2. 1	Caractéristiques des différents types de piles à combustible	45
Tableau 3. 1	Avantages et inconvénients des carburants pour pile PEMFC	71
Tableau 3. 2	Contraintes liées à l'alimentation en comburant d'une PEMFC	73
Tableau 4. 1	Liste de quelques modèles récents de pile PEMFC	86
Tableau 4. 2	Sélection de logiciels actuels de pile à combustible PEMFC	90
Tableau 5. 1	Valeurs typiques de la puissance spécifique de différents véhicules	118
Tableau 5. 2	Principales propriétés de sept cycles de conduite normalisés	119
Tableau 5. 3	Evolution des caractéristiques des véhicules de taille moyenne	122

INTRODUCTION

À l'aube du nouveau millénaire, dans un monde dominé par une rude concurrence entre les nations, la croissance économique se nourrit d'une demande toujours importante d'énergie et de transport dont l'usage provoque des répercussions catastrophiques sur l'environnement local et global, et se trouve de ce fait confronté aux réactions critiques des opinions publiques.

Outre l'épuisement à terme des ressources fossiles couvrant à ce jour 96% de la consommation mondiale d'énergie [2], et la nécessité de développer des solutions alternatives disposant d'énergies renouvelables, les industriels et constructeurs automobiles se voient contraints de réduire la pollution urbaine ainsi que les émissions des gaz à effet de serre. Désormais, ces préoccupations tendent à s'amplifier avec la croissance de la demande en énergie prévue de plus de 60 % à l'horizon 2030 [1], et le doublement probable d'ici 2025 du parc mondial de véhicules qui, omniprésents dans notre société, constituent la principale source de la pollution atmosphérique et des dérèglements climatiques.

Dès lors, il est impératif de chercher à rendre la croissance et les transports moins nocifs par l'intégration de nouvelles technologies de l'énergie renouvelable et la mise au point de dispositifs plus économes, durables et sains.

Dans cette optique, un vecteur énergétique sophistiqué qui aurait les vertus de l'électricité et des énergies fossiles sans en avoir les inconvénients, l'hydrogène apparaît comme le candidat prometteur idéal, notamment, par sa réaction électrochimique avec un comburant au sein d'une pile à combustible, qui ne produit que de l'eau, de la chaleur et de l'électricité pouvant assurer la propulsion des véhicules électriques.

En raison de sa basse température de fonctionnement, sa mise en marche rapide, son efficacité et longévité appréciables, la pile à membrane échangeuse de proton «PEMFC», concentre une part importante de recherche et de développement où elle est élue presque universellement pour équiper les véhicules à pile à combustible de l'avenir.

Le but de cette étude préliminaire est donc de présenter les perspectives attendues de la technologie PEMFC pour les applications mobiles en examinant les performances mais aussi, les contraintes posées par l'emploi de ce type de générateur comme unité de puissance électrique à bord d'un véhicule particulier.

Travaux portant sur la pile à combustible PEMFC

Parfaitement adaptée au véhicule électrique, la pile à combustible PEMFC a suscité beaucoup d'attention de la part des universités, des laboratoires de recherche, et des compagnies en raison de ses qualités intrinsèques et potentialités techniques, faisant de ce réacteur, le meilleur candidat approprié aux applications embarquées.

En effet, pendant les dix dernières années, plusieurs modèles mathématiques traitant de la pile PEMFC, ont été édités dans la littérature scientifique ou sont même disponibles commercialement avec différentes approches et des niveaux de détail distincts. La plus part sont exposés dans le quatrième chapitre de ce mémoire. Néanmoins, nous listons ci-dessous certains travaux les plus pertinents portant sur cette technologie.

Parmi ces contributions récentes, nous citons le travail de Daniel B. Genevey [19] qui a proposé un modèle transitoire pour la couche du catalyseur de cathode d'une cellule PEMFC en considérant, entre autres, la cinétique de la réaction électrochimique sur la surface de platine et le transport de proton par les agglomérés de polymère. Ce modèle mathématique est résolu en employant la méthode des éléments finis.

Tuomas Mennola [18] a établi dans sa partie expérimentale, des méthodes permettant d'identifier les différents types de polarisations ayant lieu dans la cellule PEMFC afin d'améliorer les parties les plus affectées par ces chutes de tension.

Jay T. Pukrushpan et al. [26] ont développé un modèle de contrôle dynamique non linéaire d'un système de pile PEMFC incluant des phénomènes transitoires tels que la dynamique d'écoulement dans le compresseur à air et la tubulure de remplissage.

Michael James Ogburn [23] a décrit la conception et la construction d'un véhicule électrique hybride à pile à combustible PEMFC intégrant une pile de 20kW avec un paquet de batteries. La modélisation de ce véhicule a été élaborée en utilisant le simulateur ADVISOR 2.2 et validée par des tests sur deux cycles de conduite distincts.

Joan M. Ogden et al. [7] ont comparé trois principales options pour le stockage de carburant à bord d'un véhicule à piles PEMFC et évalué pour chaque alternative les performances, l'économie de carburant, la masse et le coût de ses divers éléments.

Andreas Docter et al. [22] ont décrit les procédures fondamentales pour la modélisation et le classement d'une chaîne de propulsion d'un véhicule à pile PEMFC et l'estimation de sa consommation de carburant basée sur l'essence.

Objectif et structure de cette étude

Le présent travail a pour objectif majeur, d'étudier le potentiel énergétique d'un système de pile à combustible PEMFC intégré dans la chaîne de traction électrique «Full Power» d'un véhicule particulier. Pour évaluer les performances routières de ce dernier au cours d'un cycle de conduite normalisé, un modèle énergétique a été élaboré en ciblant les paramètres spécifiques les plus influents sur le bilan de puissances. Ceci nous a permis par la suite de dimensionner les deux principaux composants de la chaîne de motorisation. Il s'agit notamment de l'unité électrique « pile PEMFC » et du réservoir de carburant.

Concernant le système pile PEMFC, nous avons développé un modèle de simulation du comportement électrique pour lui spécifier un point de fonctionnement optimal et étudier l'impact de certains paramètres liés à la structure et aux conditions opératoires de la pile sur ses performances nominales: tension, puissance, efficacité et consommation de combustible...

L'architecture de notre mémoire fait apparaître six chapitres. Dans le premier, nous présentons la chaîne énergétique de l'hydrogène avec ses grandes filières de production et les divers modes de stockage et de distribution. Dans le second, nous rappelons quelques généralités sur la pile à combustible, à savoir son principe de fonctionnement, ses caractéristiques techniques, ainsi que la variété de ses types et leurs champs d'applications.

Le troisième chapitre se caractérise par une analyse exhaustive de la technologie de pile à combustible PEMFC et à la description des divers composants auxiliaires placés autour de ce réacteur, en particulier à bord d'un véhicule.

Pour étudier le comportement électrique de la pile PEMFC, nous établissons dans le quatrième chapitre, un modèle mathématique capable de générer sa courbe de polarisation et de calculer, selon les conditions opératoires, les performances de son système global.

Le cinquième chapitre est dédié à la simulation d'un véhicule de taille moyenne à pile PEMFC pour évaluer ses performances (puissance développée, consommation spécifique de carburant, rendement..) et dimensionner deux éléments de sa chaîne de traction électrique.

Finalement, dans le chapitre six, nous exposons et commentons les différents résultats du calcul numérique relatif à la simulation du véhicule et de sa pile PEMFC ainsi que présentons l'influence de quelques paramètres sur leurs propriétés énergétiques et électriques.

Une conclusion générale clôt notre recherche en exposant dans leurs globalités les principaux résultats obtenus.

CHAPITRE 1

ÉTUDE DE LA CHAÎNE ÉNERGETIQUE DE L'HYDROGÈNE

1. 1 Situation et perspectives de recherche sur l'énergie

Au début du XXI^e siècle, de nombreuses et importantes questions se posent à notre société qui doit se préparer à faire face à l'accroissement démographique et, à l'amélioration générale du niveau de vie et du confort des 10 à 12 milliards d'individus annoncés pour 2100, [1].

Parmi les problèmes à résoudre et qui revient avec force sous les feux de l'actualité : la disponibilité de l'énergie, en qualité et quantité suffisante pour assurer l'équilibre et la durée de notre fragile écosystème. En effet depuis un quart de siècle après le premier choc pétrolier, une nouvelle donne énergétique se dessine comme résultante d'un ensemble de facteurs économiques, sociopolitiques, scientifiques et technologiques.

La question des transports, qui représentent le quart de l'énergie consommée et dont le pétrole couvre 95% des besoins [1], apparaît à cet égard comme cruciale. Ainsi, nous sommes appelés à évaluer la compétitivité de l'hydrogène comme vecteur énergétique complémentaire de l'électricité

1. 1.1 Production mondiale actuelle d'énergie

Globalement, la consommation mondiale d'énergie primaire exprimée en tonnes d'équivalent pétrole (tep, 1tep = 42 Milliards de joules) se monte à l'orée du XXI^e siècle à 10 milliards de tep/an qui se répartissent entre les différentes sources (Tableau 1.1).

Une première remarque s'impose : la consommation mondiale d'énergie primaire est pour 96% basée sur des sources non renouvelables y compris l'énergie nucléaire dont les ressources de l'uranium 235 restent limitées. Seule l'électricité hydraulique (3%) et les quelques productions par les technologies en cours de développement (éolien, photovoltaïque, biomasse...) peuvent être considérées comme des énergie renouvelables.

Tableau 1. 1 : Consommation mondiale et répartition des sources d'énergie primaire, [2].

CONSOMMATION MONDIALE D'ENERGIE PRIMAIRE	MILLIARDS DE TEP	POURCENTAGE (%)
Pétrole	4,0	40
Charbon	2,7	27
Gaz naturel	2,3	23
Autres sources primaires :(nucléaire, hydraulique et autres énergies renouvelables)	1,0	10

1. 1.2 Perspectives d'évolution de la demande d'énergie primaire

La demande mondiale d'énergie primaire poursuit sa croissance et sa répartition géographique se modifie, sous l'effet :

- De l'accroissement de la population mondiale.
- Des efforts des pays en voie de développement pour combler leur retard économique.
- Du maintien d'une légère croissance de la demande énergétique dans les pays développés.

Les experts tablent sur une croissance moyenne comprise entre 1% et 2% par an pour les prochaines décennies, ce qui conduit à prévoir le doublement de la demande mondiale dans les 4 ou 5 prochaines décades, [2]. Ainsi, nous risquons dans un futur proche d'être confrontés à des pénuries et à de fortes augmentations de prix.

Le tableau ci-dessous résume la situation préoccupante en ce qui concerne les hydrocarbures et le charbon.

Tableau 1. 2 : Réserves mondiales d'énergie primaires fossiles, [1].

COMBUSTIBLES FOSSILES	RESERVES MONDIALES PROUVEES en (GTEP)	CONSOMMATION ANNUELLE EN 2000 en (GTEP)	DUREE (au rythme de la consommation actuelle)	REMARQUES
Pétrole	Env.160 Gtep	4,0 Gtep	Env.40 ans	75% des réserves sont localisées dans les pays de l'OPEP.
Gaz naturel	Env.135 Gtep	2,3 Gtep	Env.60 ans	
Charbon	Env.550 Gtep	2,7 Gtep	Env.200 ans	

1. 1.3 Conséquences de production d'énergie sur l'environnement

L'augmentation de la teneur en CO₂ dans l'atmosphère constatée depuis plus d'un siècle et son accélération au cours des dernières décades sont, sans nul doute, liées à l'activité humaine et en premier lieu à la production d'énergie. L'accroissement de « l'effet de serre » qui en résulte, provoque une élévation de la température moyenne de l'air à la surface du globe estimée à environ 0,5 C° au cours du XX^e siècle [1], ce qui induit des changements climatiques dont les effets à long terme pourraient être dramatiques pour la planète : fonte des glaces polaires, augmentation notable du niveau des mers, modifications des courants marins, des tornades...Ceci a suscité l'organisation d'importantes conférences sur l'environnement global, en particulier celle de Kyoto (décembre 1997), où a été signé le protocole de réduction des émissions des gaz à effet de serre [1].

1. 1.4 Transitions et développement durable des énergies

Le concept de développement durable vise à « satisfaire les besoins du présent sans hypothéquer la capacité des générations futures à satisfaire leurs propres besoins », mais il est clair que la simple poursuite des schémas et politiques énergétiques actuels conduit à une triple impasse sur le plan de:

1. Contrôle des émissions de CO₂ et des changements climatiques qu'elles induisent,
2. La pollution dans les agglomérations urbaines,
3. La disponibilité (et donc des prix) des combustibles fossiles et tout d'abord du pétrole, la première aujourd'hui des ressources énergétiques (40% du total).

Par conséquent, il va falloir changer progressivement la nature et le « mixte » des énergies primaires, réduire la consommation mondiale des énergies fossiles et développer la part des énergies renouvelables en modifiant les infrastructures qui lui permettent de s'introduire de façon substantielle dans le bilan global des sources d'énergie. Dans ce contexte, à côté du vecteur énergétique fondamental que représente l'électricité, l'hydrogène prendra une place décisive dans les systèmes énergétique de demain, grâce à :

- ▶ Sa compatibilité avec toutes les autres sources d'énergie,
- ▶ Sa capacité d'être stocké et distribué,
- ▶ L'amélioration des rendements énergétiques et la suppression de toute émission polluante, avec les performances des piles à combustible.

1. 1.5 Promesses de l'hydrogène

En conséquence des deux constats formulés ci-dessus : l'appauvrissement inéluctable des ressources fossiles et l'augmentation dangereuse de l'effet de serre, une révolution énergétique s'avère incontournable avant la fin du XXI^e siècle. Mais quelques soient les formes d'énergies primaires sollicitées, il restera toujours des fonctions essentielles à assurer : le transport et le stockage d'une forme secondaire de l'énergie pour l'amener sur un site d'utilisation et sa conversion en une forme aisément utilisable.

Sans prendre de grands risques, nous pouvons penser que, dans l'avenir, l'hydrogène assurerait la première et, la pile à combustible assurerait la seconde pour produire de l'électricité, vecteur énergétique performant et incontesté, mais il faut, au préalable, apporter des réponses satisfaisantes aux quatre questions liées à sa production, son utilisation comme combustible, son stockage et sa distribution.

Pour cadrer les réflexions sur la place que l'hydrogène pourrait être amené à prendre dans les prochaines décades dans le domaine de l'énergie, nous voudrions succinctement rappeler dans cette partie d'étude, quelques données de base sur l'hydrogène, présenter ses principales filières de production, ainsi que ses différents modes de stockage et de distribution.

1. 2 Propriétés physico-chimiques de l'hydrogène

L'hydrogène, auquel colle trop souvent une image de danger (les accidents de l'Hindenburg et de Challenger, voire l'arme thermonucléaire), est pourtant paré de séduisantes qualités (Tableau 1.3). Élément atomique le plus abondant dans l'univers, il est léger et énergétique mais, contrairement aux sources primaires d'énergie, le gaz d'hydrogène doit être fabriqué avant d'être stocké et utilisé.

Sa densité d'énergie (120 MJ/kg) est élevée comparée à celle de l'essence, par exemple (45 MJ/kg). Sa densité d'énergie volumique est en revanche, plus faible, un litre d'essence équivalant, sur le plan énergétique, à 4,6 litres d'hydrogène comprimé à 700 bars [1].

Tableau 1. 3 : Principales propriétés physicochimiques de l'hydrogène et quelques comparaisons avec le gaz naturel, [4].

PROPRIETE	VALEUR NUMERIQUE
PCI (Pouvoir Calorifique Inférieur)	10 800 kJ/Nm ³ 119 930 kJ/kg (gaz naturel 50 020 kJ/kg)
PCS (Pouvoir Calorifique Supérieur : inclut l'énergie de la vapeur d'eau)	12 770 kJ/Nm ³ 141 860 kJ/kg 3,55 kWh/Nm ³ 39,41 kWh/kg
Densité gazeuse à 20,3 K	1,34 kg/m ³
Densité gazeuse à 273 K	0,08988 kg/Nm ³ (gaz naturel 0,6512 kg/Nm ³)
Densité liquide à 20,3 K	70,79 kg/m ³
Chaleur spécifique (C _p)	14 266 J/kg.K (293K)
Chaleur spécifique (C _v)	10 300 J/kg.K (293K)
Conductivité thermique du gaz	0,1897 W/ (m.K)
Chaleur d'évaporation	445,5 kJ/kg
Energie théorique de liquéfaction	14 112 J/g (3,92 kWh/kg)
Electronégativité (Pauling)	2,1
Masse atomique	1,0079
Constante du gaz	4 124,5 j/kg.K
Température de solidification	14,01 K
Température d'ébullition (à 1,013 bar abs)	20,268 K
Température critique	33,30 K

C'est un carburant non polluant, non toxique, dont la combustion ne rejette que de l'eau, et éventuellement un peu d'oxyde d'azote (si celle-ci se produit avec de l'air à haute température). Seule son explosivité, dans des conditions particulières (milieu confiné) pose des problèmes solubles par ailleurs.

L'hydrogène possède un domaine d'inflammabilité large (4% - 75%) : (Concentrations minimale et maximale autorisant la combustion), son énergie d'inflammation est environ 10 fois inférieure à celle des hydrocarbures classiques. Cependant, sa température d'auto inflammation est plus élevée (858 K), (Tableau 1.4). La flamme de la combustion de l'hydrogène dans l'air est quasi-invisible et est très chaude (2000°C).

Tableau 1. 4 : Caractéristiques d'inflammation de l'hydrogène et du propane, [5].

PROPRIETES	HYDROGENE	PROPANE
Domaine d'inflammabilité dans l'air, (% vol).	4 - 75	2,1 – 9,5
Energie minimale d'inflammation, (mJ).	0,02	0,26
Température d'auto inflammation, (K).	858	760
Vitesse de combustion dans l'air (à P_{atm} et T_{atm}), (cm/s).	265 - 325	30 - 40
Energie d'explosion, (g TNT/g produit - kgTNT/cm ³ gaz).	24 - 2,02	10 - 20,3

L'inflammation d'un nuage d'hydrogène formé lors d'une fuite peut, dans certaines configurations, donner lieu à une explosion. Cette libération soudaine d'énergie entraînant la propagation d'un front de flamme avec une onde de surpression peut se présenter relativement à la concentration de l'hydrogène dans le comburant sous deux régimes, [5]:

- Déflagration : obtenue pour des concentrations allant de 4 à 18 % et de 59 à 74,5% ;
- Détonation : atteinte sur une plage de valeurs allant de 18 à 59 %.

Lorsque l'explosion est amorcée, son état peut transiter de la déflagration à la détonation (TDD). Cette transition dépendra des facteurs agissant sur la vitesse du front de flamme : la turbulence créée par présence des obstacles, les gradients de pression...

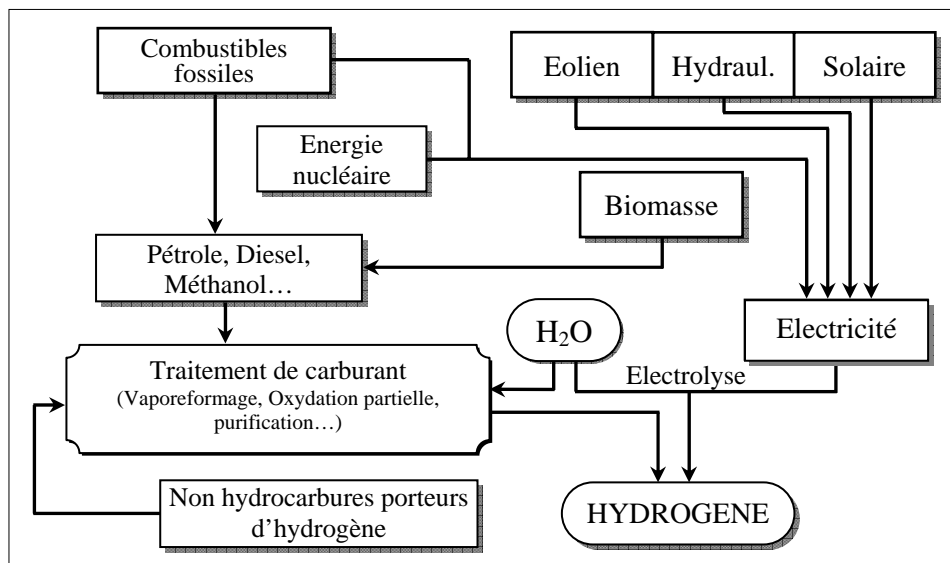
Ces propriétés font de l'hydrogène à la fois une vedette énergétique du siècle qui débute, et un gaz auto détonant extrêmement inflammable, ce qui impose de nombreuses précautions lors de la mise en œuvre de cette substance.

1. 3 Grandes filières de production de l'hydrogène

Les principales filières de production d'hydrogène sont basées sur des principes classiques et industriellement exploités depuis longtemps. Leur adaptation jusqu'à de très petites tailles, dans le cadre de la conception de systèmes embarqués, ne pose pas, a priori, de problèmes techniques majeurs.

Nous listons ci-dessous les trois principales filières de production envisageables et combinables entre elles mêmes (Figure 1.1) [1, 2]:

- a) Oxydation de gaz ou de produits organiques d'origine fossile ou végétale (charbon, hydrocarbures ...);
- b) Electrolyse de l'eau à partir d'électricité d'origine hydraulique ou nucléaire...;
- c) Production directe à partir de la biomasse par l'utilisation de bactéries ou par gazéification.



Le choix de la filière de production d'hydrogène est complexe, il dépend du contexte des ressources énergétiques internes, de la politique énergétique du pays, du tissu industriel. Le rendement de cette production reste étroitement lié à l'énergie mise en œuvre. Ainsi, pour produire 1kWh d'hydrogène utilisable, il faut recourir à 3,3kWh d'énergie hydraulique, 8kWh d'énergie nucléaire (moins avec le nucléaire à haute température) et 20kWh solaire, [1].

1. 3.1 Production de l'hydrogène à partir des hydrocarbures

Les productions industrielles d'hydrogène à grande échelle se sont progressivement orientées vers les options les plus efficaces d'un point de vue économique et l'énergie dominante est, de loin, le gaz naturel constitué principalement de méthane. D'autres sources d'énergie fossile sont utilisées puisqu'elles contiennent aussi de l'hydrogène libérable grâce à l'énergie qu'elles peuvent facilement fournir par oxydation.

Toutes les voies attrayantes qui vont des énergies fossiles à l'hydrogène passent par les gaz de synthèse, mélange de $\text{CO} + \text{H}_2$ [2]. Cependant, la configuration optimale des procédés dépend de l'objectif à atteindre car la majorité de l'hydrogène produit dans le monde est captif ; il conduit alors, dans des unités intégrées à l'ammoniac et dérivés, ou bien au méthanol. La recherche de synergies et la quête de l'effet d'échelle resteront les règles d'or des nouvelles voies passant par le carrefour stratégique qui est en train de devenir le gaz de synthèse.

Deux d'entre elles ont un potentiel de développement considérable car, elles débouchent respectivement sur les carburants et sur la production d'électricité [2]:

- ▶ La voie GtL (Gaz to Liquids) : conduisant à deux familles de carburants de synthèse à partir du gaz naturel : le méthanol et les carburants proches des produits pétroliers par la voie Fischer-Tropsch,
- ▶ La voie IGCC (Integrated Gasification Combined Cycle) : fournissant un mélange de CO et H_2 à partir de résidus pétroliers lourds ou de charbon, mais qui soit susceptible d'être utilisé dans les turbines à gaz.

Les technologies dominantes aujourd'hui sont, pour les gaz de synthèse [3, 6, 15]:

- Vaporeformage catalytique (CSR : Catalytic Steam Reforming) d'hydrocarbures ou d'alcools légers,
- Oxydation partielle (POX : Partial Oxydation) d'hydrocarbures et huiles lourdes, voire de charbon (gazéification),
- Reformage autothermique (ATR : Autothermal Reforming), qui est une combinaison des deux précédentes.

Les principales techniques connues actuellement pour la préparation d'un hydrogène assez pur à partir du gaz de synthèse disponible (Gas clean-up) sont les suivantes [2, 6, 8]:

- Elimination du CO (Water Gas Shift) : qui consiste à faire réagir le monoxyde de carbone CO avec de l'eau pour donner du CO_2 et de l'hydrogène,

- Purification par adsorption avec PSA (Pressure Swing Adsorption) : cette méthode est basée sur la séparation des composés en phase gazeuse grâce à des lits de tamis moléculaires.
- Purification par oxydation préférentielle (PROX : Preferential Oxydation) : qui correspond à faire réagir le CO avec de l'oxygène pour produire du CO₂.
- Elimination par méthanation : cette réaction permet de réduire le monoxyde de carbone avec l'hydrogène pour donner du méthane et de l'eau.
- Purification par membranes (Pd/Ag) : cette technique se base sur la haute sélectivité du Palladium et de ses alliages vis-à-vis de l'hydrogène permettant son absorption et bloquer, par contre, sélectivement la perméabilité du CO qui, une fois brûlé en CO₂, est extrait du système.

1.3.1.1 Production de l'hydrogène par vaporeformage

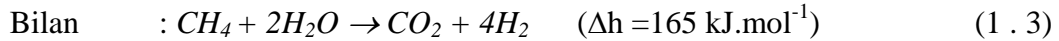
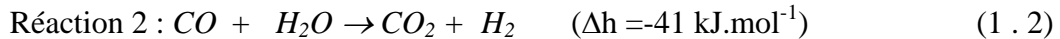
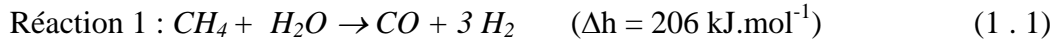
Le reformage à la vapeur consiste à transformer les charges légères d'hydrocarbures en gaz de synthèse (mélange H₂, CO, CO₂, CH₄ et H₂O) par réaction avec la vapeur d'eau sur un catalyseur au nickel. Cette transformation a lieu à haute température (840 à 950°C) et à pression modérée (de l'ordre de 20 à 30 bars) [2].

Le vaporeformage peut être suivie par différentes opérations qui conduisent à la production d'hydrogène mais aussi, d'après ce que nous venons de voir, à l'obtention de carburant de synthèse. Dans tous les cas, la charge d'une unité de vaporeformage peut être du gaz naturel, du méthane, du méthanol, voire du naphta, le gaz naturel constituant la charge de référence.

1.3.1.1.1 Vaporeformage du gaz naturel

Le gaz naturel contient essentiellement du méthane. Toutefois, il doit généralement être désulfuré avant d'être dirigé vers l'unité de vaporeformage.

Pour maximiser la production d'hydrogène, les deux principales réactions chimiques à mettre en œuvre sont la production de gaz de synthèse et la conversion du CO [2].



La réaction 1 : Correspond au vaporeformage proprement dit, elle est endothermique et se caractérise par un rapport H₂/CO de l'ordre de 3. Au niveau du réacteur, les conditions opératoires à employer sont plus ou moins sévères et dépendent principalement du mode de purification finale de l'hydrogène.

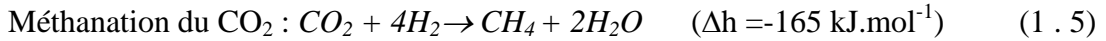
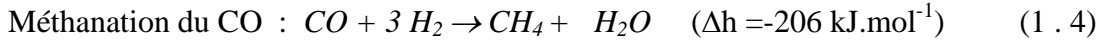
Deux voies sont industriellement possibles : la méthanation et l'adsorption sélective sur tamis moléculaire (PSA). Dans le premier cas (méthanation), des conditions opératoires sévères sont nécessaires pour obtenir une pureté de l'hydrogène supérieure à 97%. Dans le second cas (PSA), il est possible d'obtenir une pureté d'hydrogène de 99,9% quelque soit la charge. Autrement dit, des conditions opératoires modérées, qui conduisent à une teneur en méthane résiduel de 3 à 8%, sont suffisantes [2].

La réaction 2 : Correspond à la conversion du CO (Water Gas Shift). Elle est légèrement exothermique et plus ou moins complète, selon qu'elle soit effectuée en une ou deux étapes. Globalement, le bilan des deux réactions précédentes est endothermique. Nous pouvons mentionner également que le gaz de synthèse, après conversion du CO, contient en moyenne 16 à 20% en volume de CO₂.

Les deux étapes suivantes consistent à séparer le CO₂ et l'hydrogène, puis à éliminer les dernières impuretés. Comme précédemment, ces étapes dépendent du mode de purification finale de l'hydrogène.

Dans la voie méthanation, deux étapes distinctes se succèdent : la décarbonatation et la méthanation. Lors de la première étape, qui consiste à éliminer le CO₂, nous utilisons des procédés aux éthanolamines ou aux carbonates, le CO₂ restant ne représente plus que 0,005 à 0,1% en volume.

Lors de la seconde étape, la méthanation du CO et du CO₂ résiduaire est effectuée pour donner lieu à des teneurs finales inférieures à 0,001% [2].



La voie (PSA) ne comporte pas l'étape de décarbonatation et la purification de l'hydrogène (par adsorption des impuretés sur des lits de tamis moléculaires) est effectuée directement sur le gaz de synthèse qui contient 65 à 70% d'hydrogène après conversion du CO.

1. 3.1.1.2 Vaporeformage d'autres charges

Nous montrons ci-après le schéma de principe du procédé de vaporeformage du méthanol, ce dernier est très attrayant pour l'alimentation des piles à combustible car sa logistique (du point de vue transport et sécurité) est beaucoup plus simple que l'hydrogène gazeux, Cependant son caractère toxique est un handicap à une diffusion massive.

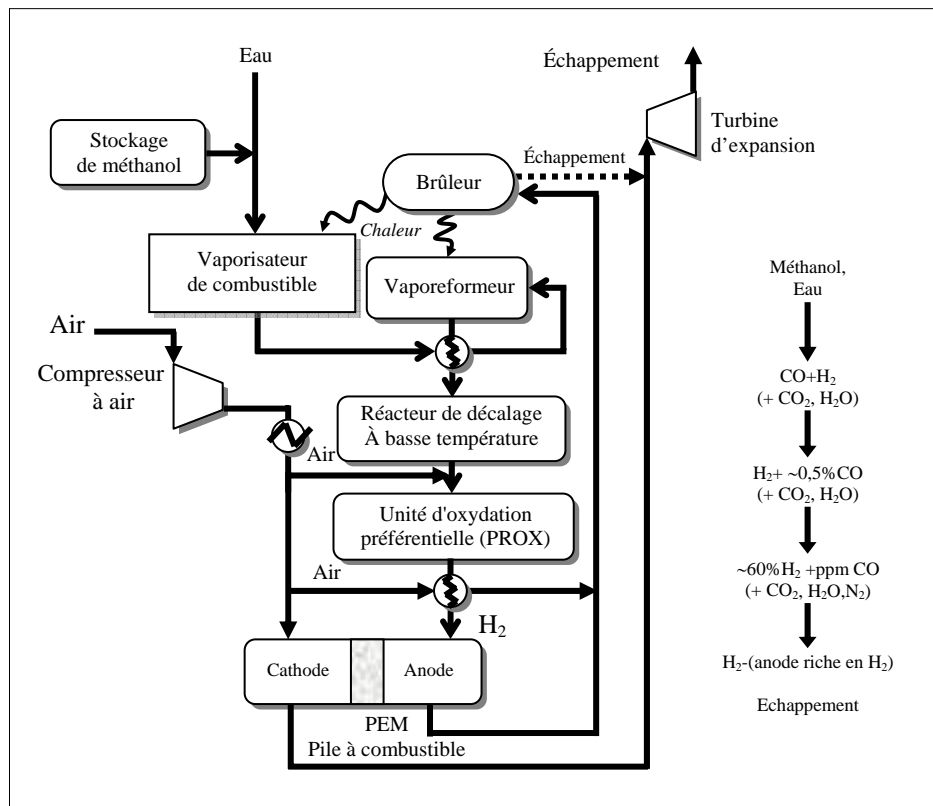


Figure 1. 2 : Réaction de vaporeformage du méthanol, [6].

Le procédé de vaporeformage peut convertir des charges hydrocarbonées plus ou moins lourdes. Le naphta représente la charge la plus lourde (Tableau 1.5).

Tableau 1. 5 : Composition du gaz de synthèse obtenu par vaporeformage (Avant conversion du CO) selon la nature de la charge, [2].

MATIERE PREMIERE	METHANE (% VOLUME)	GAZ NATUREL (% VOLUME)	GPL (% VOLUME)	NAPHTA (% VOLUME)
CH ₄	03,09	02,91	02,39	02,12
CO	12,16	12,62	13,62	14,17
CO ₂	09,66	10,40	12,73	14,19
H ₂	75,12	73,89	71,86	69,52
N ₂	-	00,09	-	-

1. 3.1.2 Production de l'hydrogène par oxydation partielle

L'oxydation partielle peut être effectuée sur des produits plus ou moins lourds allant du gaz naturel aux résidus lourds, et même au charbon.

D'un point de vue économique, le traitement des charges lourdes se justifie quand le surinvestissement consenti est compensé par un coût réduit de la matière première, le coke de pétrole par exemple.

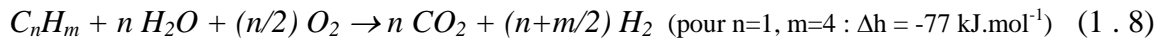
A haute température (brûleur : 1200 à 1500°C) et à pression élevée (20 à 90 bars ou plus), en présence d'un oxydant (l'air) et d'un modérateur de température (la vapeur d'eau), l'oxydation partielle des hydrocarbures conduit, à l'instar du vaporeformage, à la production de gaz de synthèse. En revanche, la réaction est exothermique et se déroule (en général) sans catalyseur.

Les deux technologies majeures au niveau industriel sont les procédés «SHELL» et «TEXACO» [2].

1.3.1.2.1 Oxydation partielle de résidu sous vide

Les deux principales réactions sont la production de gaz de synthèse (réaction globale simplifiée représentée par l'équation (1. 6)) et la conversion du monoxyde de carbone (équation (1. 7)).

Un résidu sous vide type contient plus d'une cinquantaine d'atomes de carbone. Il est symbolisé ici par la chaîne hydrocarbonée C_nH_m .



La réaction (1.6) (température comprise entre 1300 et 1400°C) correspond à l'oxydation proprement dite, elle est exothermique et se caractérise par un rapport H_2/CO de l'ordre 0,75 (pour un rapport H/C de l'ordre de 1,5). Elle représente le résultat global d'un grand nombre de réactions qui conduisent à la formation de CO et de H_2 mais aussi de H_2O , C (suie) et CH_4 .

Avant conversion du CO , une composition typique (en volume) du gaz de synthèse est la suivante [2]: 46% de H_2 , 46% de CO , 6% de CO_2 , 1% de CH_4 et 1% de N_2 . Il faut remarquer également que le gaz de synthèse contient souvent des produits soufrés. En effet, le soufre contenu initialement dans la charge (résidus lourds pétroliers notamment) est converti essentiellement en H_2S et un peu en COS ; c'est pourquoi ces deux produits se retrouvent dans le gaz de synthèse, qu'il faut donc désulfurer.

Selon le procédé d'oxydation partielle utilisé, cette désulfuration est effectuée avant l'étape de conversion du CO pour «Shell» ou après pour «Texaco».

Ces deux technologies (Shell et Texaco), relatives à la réaction (1. 6), comprennent un brûleur, une section de récupération des calories et une section d'élimination des suies. Suivant le procédé employé, le gaz de synthèse obtenu diffère au niveau de sa teneur en eau et de sa température.

La réaction (1.7) de conversion du CO est presque complète quelque soit la technologie choisie et est similaire à celle déjà décrite dans le cas du vaporeformage. Globalement, le bilan des deux premières réactions est exothermique (équation (1 . 8)).

Les deux étapes suivantes sont la décarbonatation et la purification de l'hydrogène par méthanation ou par adsorption (Tableau 1.6).

Tableau 1. 6 : Etapes de l'oxydation partielle pour les technologies Texaco et Shell, [2].

TECHNOLOGIE ETAPE	TEXACO (Trempe)	SHELL (Chaudière de récupération)
1 - Production de gaz de synthèse (oxydation partielle)	$C_nH_m + (n/2) O_2 \rightarrow n CO + (m/2) H_2$	$C_nH_m + (n/2) O_2 \rightarrow n CO + (m/2) H_2$
2 - Elimination du gaz CO ; désulfuration	$n CO + n H_2O \rightarrow n CO_2 + n H_2$ puis désulfuration	Désulfurisation puis $n CO + n H_2O \rightarrow n CO_2 + n H_2$
3 - Elimination du CO ₂	Décarbonatation	Décarbonatation
4 - Purification de H ₂	Méthanation ou PSA	Méthanation ou PSA
• Méthanation du CO et CO ₂ résiduaux	$CO + 3 H_2 \rightarrow CH_4 + H_2O$ $CO_2 + 4 H_2 \rightarrow CH_4 + 2 H_2O$	$CO + 3 H_2 \rightarrow CH_4 + H_2O$ $CO_2 + 4 H_2 \rightarrow CH_4 + 2 H_2O$
Ou		
• PSA	Adsorption sélective	Adsorption sélective
Remarques :		
☞ Pureté de H ₂	99,9% (PSA)	99,9% (PSA)
☞ Taux de récupération de H ₂ (à partir du gaz de synthèse)	85 à 88% (PSA)	85 à 88% (PSA)

Dans la figure 1.3, nous exposons les diverses étapes que doit subir un hydrocarbure, tel que l'essence, au cours d'un processus d'oxydation partielle pour la production de l'hydrogène.

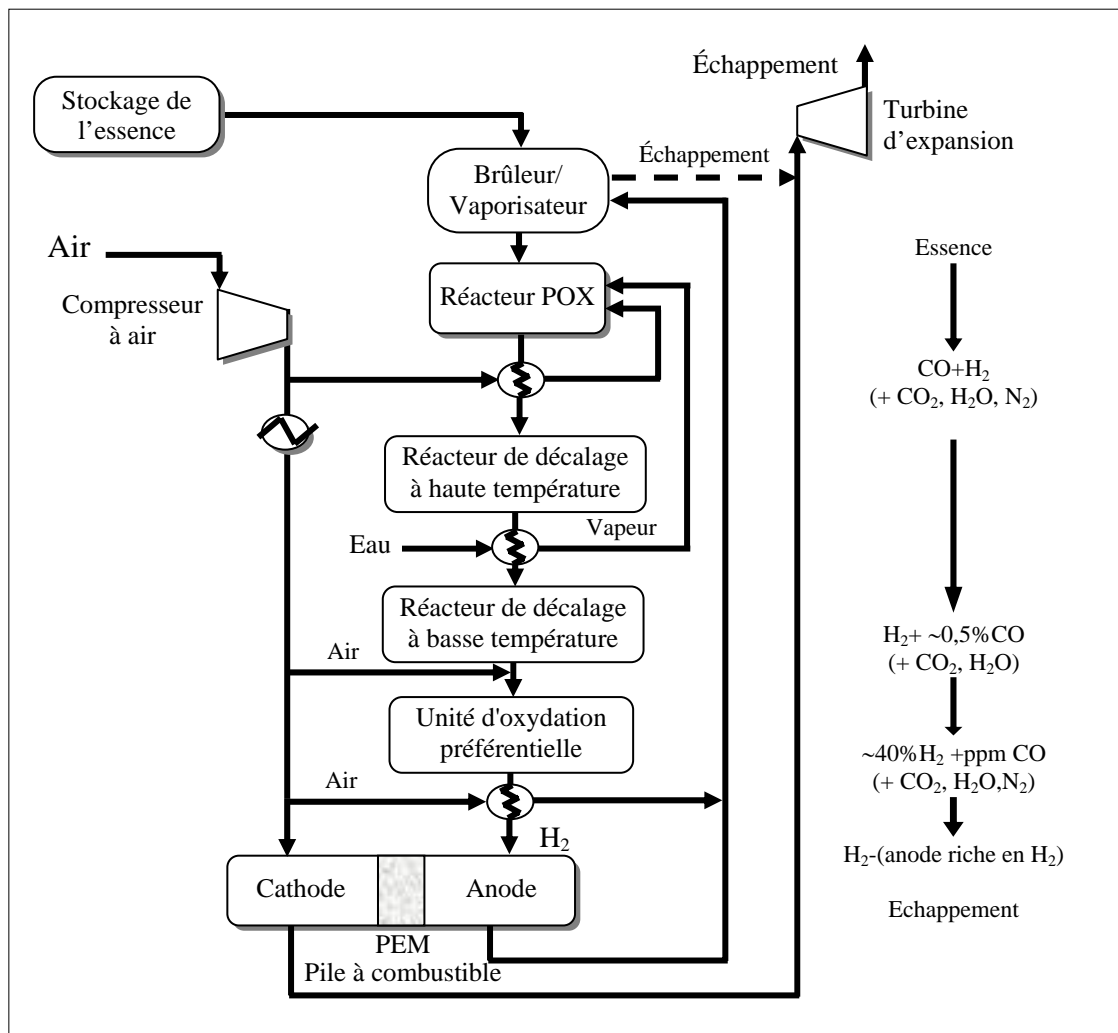


Figure 1. 3 : Oxidation partielle d'un hydrocarbure en hydrogène [7].

1. 3.2 Production de l'hydrogène à partir de l'électrolyse de l'eau

La voie la plus intéressante en terme d'émission de gaz à effet de serre apparaît celle de l'électrolyse de l'eau, sous réserve qu'elle soit économiquement compétitive et réalisée à partir des sources d'énergie électrique elles mêmes non productrices de gaz polluants telle que l'énergie nucléaire.

Partant de l'énergie nucléaire, dont la seule application actuelle (en dehors des armes) est la production d'électricité, deux grandes voies, économiquement et socialement acceptables s'offrent pour la décomposition de l'eau, [2]:

- Electrolyse à partir du courant électrique fourni par une centrale électrogène.
- Le craquage de l'eau à partir de réaction thermochimiques (procédé IS) alimentée en chaleur (vers 850°C) par des réacteurs à neutrons rapides intrinsèquement sûrs et consommant de combustibles abondants (Uranium 238 et thorium) avec des rendements de l'ordre de 60%.

Dans l'hypothèse de recours aux énergies solaires, stricto sensu ou au sens le plus large, le mode de production dépendra de la forme considérée. S'il s'agit d'énergie photovoltaïque ou éolienne, l'électricité produite et non consommée directement sur le réseau, produira par électrolyse de l'eau, de l'hydrogène stocké sur place ou injecté dans un réseau spécifique.

1. 3.3 Production de l'hydrogène à partir de la biomasse

La biomasse, constituée de tous les végétaux, en particulier les plantes ligno-cellulosiques qui se développent sur la planète, en réalisant le captage et le stockage de l'énergie solaire, représente une ressource locale et renouvelable considérable, dont on peut distinguer trois origines principales [2]:

- a . La biomasse forestière,
- b . La biomasse agricole,
- c . Les déchets de notre société.

L'hydrogène pur est extrait du gaz raffiné obtenu par transformation thermochimique de la biomasse. Ce procédé comporte une succession d'opérations mettant en jeu de grandes quantités de chaleur et nécessite un contrôle rigoureux.

Une autre voie de production directe d'hydrogène est envisagée chez certaines microalgues lors de leur photosynthèse ou par photobiochimie des enzymes appelées hydrogénases. Ces microorganismes, susceptibles de produire de l'hydrogène gazeux sous l'action de la lumière en réalisant la réaction inverse de l'oxydation de l'hydrogène moléculaire, se divisent en deux grandes familles [1]:

- Hydrogénases à nickel - fer.
- Hydrogénases à fer.

1.4 Stockage de l'hydrogène

Quand le procédé de production d'hydrogène est déconnecté du système pile, notamment pour les applications dans le domaine des transports, il faut embarquer l'hydrogène dans un stockage afin de l'adapter au mieux aux modes de consommation, avec souvent des contraintes de poids et de volume restreints.

Les deux alternatives les plus couramment employées sont [1, 2, 8]:

- Le stockage sous forme liquide.
- Le stockage sous pression.

Deux autres procédés, encore au stade de laboratoire n'ont pas encore donné de résultats pratiques tangibles [8, 9]:

- ▶ Le stockage sous forme d'hydrures métalliques.
- ▶ Le stockage dans des nanotubes, (pour bientôt).

1.4.1 Stockage de l'hydrogène liquide (LH2)

C'est, a priori, une des solutions les plus simples, et c'est sous cette forme que l'hydrogène est transporté sur route, sans dommage connu depuis des décennies. Bien qu'assez coûteuse en énergie (environ 30% du PCI est nécessaire), la technologie de liquéfaction est bien maîtrisée, et le rapport énergie stockée sur poids ou volume est correct.

Le remplissage de réservoir ne pose pas de problème particulier (avec des précautions d'usage bien connues de la profession), et peut s'envisager dans le cadre de stations services spécialisées. Cependant, la température de vaporisation étant très basse (-253°C, voir tableau 1.3), il faut que le réservoir cryogénique soit très bien isolé thermiquement, en assurant un vide secondaire entre ses deux parois et, capable de supporter la surpression engendrée par la vaporisation partielle de la masse d'hydrogène liquide. Cette évaporation « boil-off » est due aux pertes d'isolation dont la valeur, selon la taille du réservoir, reste comprise entre 0,1 et 1% par jour [1].

Une purge par des événements doit, de plus, permettre de dégazer en cas de surpression, vers un brûleur catalytique qui évite les fuites vers l'atmosphère. Des réservoirs performants permettent d'éviter ces purges même pour des arrêts de service supérieurs à 5 jours, [8].

La faible température de stockage permet, par ailleurs, de disposer d'une source froide embarquée, ce qui se révèle utile, mais délicat à l'usage, pour optimiser la conception thermodynamique de l'ensemble.

1.4.2 Stockage de l'hydrogène sous pression (CGH2)

La compression d'hydrogène gazeux est un autre moyen d'augmenter la quantité stockée à volume donné. Pour cela, nous utilisons soit des réservoirs naturels (souterrains) ou artificiels (fixes ou transportables) de formes cylindriques en métaux composites renforcés avec de l'aluminium. Pour atteindre des quantités stockées intéressantes, il faut comprimer le gaz à plusieurs centaines de bars (jusqu'à 500 bars) [2], ce qui constitue un coût énergétique non négligeable.

En outre, l'opération de remplissage des réservoirs induisant des phénomènes de fatigue et de fragilisation amplifiés à hautes pressions, ne peut s'effectuer qu'en milieu industriel, ce qui en limite le champ d'application à un système d'échange standard du composant complet.

1.4.3 Autres formes de stockage (adsorption et absorption)

Il existe d'autres pistes technologiques récentes pour améliorer la capacité de stockage d'hydrogène. Elles sont pour la plupart basées sur l'adsorption des molécules du gaz par l'effet des forces de VAN DER WAALS (phénomène de capillarité) sur la surface de micro-éléments solides sous des pressions et des températures proches de l'ambiante. L'hydrogène ainsi stocké est libéré (désorbé) à la demande, par réchauffage de l'adsorbant.

Il s'agit de structures graphitiques tubulaires nanométriques découvertes en 1991. Il existe deux types de nanotubes de carbone qui se différencient par leur paroi [9]:

- ▶ Nanotubes à paroi simple : « Single Walled Nanotubes » (SWNT).
- ▶ Nanotubes à paroi multiples : « Multiwalled Nanotubes » (MWNT).

Nous donnons ci-dessous quelques résultats de recherches sur l'adsorption de l'hydrogène dans de différents types de nanotubes.

Tableau 1. 7 : Résumé de quelques résultats sur l'adsorption de l'hydrogène dans les nanotubes, [9].

REFERENCES	ADSORBANT	STOCKAGE (% massique)	TEMPERATURE (K)	PRESSION (Bar)
Dillon et al.	SWNT	5 à 10	300	0,4
Liu et al.	SWNT	4	300	120
Zhu et al.	MWNT	5	300	100
Yang	MWNT Li dopé	2,5	200 - 400	1
Darkrim et al.	SWNT	11	80	100
Chambers et al.	GNF (Graphite Nano-Fibers)	65	300	120

D'autres métaux sont en mesure de former un alliage ou un complexe avec l'hydrogène (hydrures métalliques) et, présentent ainsi un changement de structure suite à l'absorption de l'hydrogène. Leur capacité de stockage est importante dans un faible volume (25 à 250 gH₂/litre) avec des valeurs massiques variant de 0,5 à 7% H₂ par masse de substrat, [1].

Ces techniques présentent l'intérêt d'un stockage solide. Cependant, le poids et le prix des hydrures actuellement envisagés, ainsi que le caractère exploratoire des recherches actuelles menées dans le domaine, n'en font pas une solution technologiquement disponible à brève échéance.

1. 5 Distribution et transport de l'hydrogène

La logistique de distribution des gaz industriels est représentée dans la figure 1.4. Une unité centrale génère de grandes quantités de gaz.

Pour l'hydrogène, il s'agit en général d'unités de reformage à la vapeur de gaz naturel qui produisent quelques centaines à quelques milliers de kilogrammes d'hydrogène par heure. L'hydrogène ainsi produit sous une pression de 10 à 30 bars est purifié dans des bouteilles d'adsorption, puis il est comprimé à une pression comprise entre 75 et 100 bars pour être injecté dans un réseau de pipelines [2].

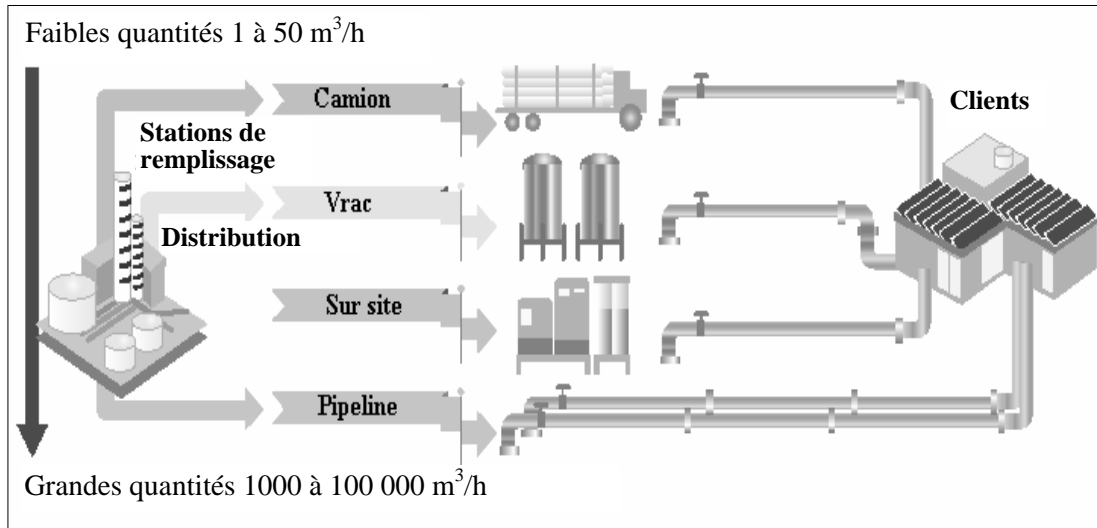


Figure 1. 4 : Différents modes de distribution des gaz industriels (hydrogène), [1].

Ce «réseau hydrogène» permet de relier les principaux points de production d'hydrogène à ceux de son utilisation. Il peut également jouer le rôle de réservoir : lorsque la consommation exceptionnelle se produit, alors l'ensemble des canalisations répond à la demande qui consiste, par exemple, à faire le plein simultané de bus hydrogène rentrant au dépôt le soir.

Les réseaux de pipelines actuels assurent une couverture importante, mais insuffisante pour répondre à la demande des consommateurs éloignés des bassins de production. Dans ce cas, l'hydrogène produit doit être transporté sur route et stocké auprès du consommateur.

Pour transporter, à bon marché, quelques tonnes d'hydrogène, il s'agit de le liquéfier dans des unités alimentées par un reformer dédié, ou bien par le réseau de pipelines.

L'hydrogène liquide produit est stocké dans de grands réservoirs (250 000 litres) à super isolation sous vide; cette réserve peut être particulièrement utile en cas de secours. En effet, si la quantité d'hydrogène insufflée dans le réseau par les unités de production est momentanément insuffisante, alors des pompes compriment l'hydrogène liquide qui est ensuite vaporisé et injecté dans le réseau. En fonctionnement normal, ces réservoirs sont reliés à des stations de remplissage de camions semi-remorques d'une capacité de 50 m^3 , soit un peu plus de 3 tonnes d'hydrogène dont le remplissage nécessite plusieurs heures.

Les risques sont bien maîtrisés par le moyen de nombreux détecteurs de fumée, explosimètres, caméras UV, et systèmes d'extinction automatique..., équipant l'installation.

Le camion d'hydrogène se rend ensuite sur le site consommateur pouvant être fort éloigné et équipé d'un réservoir de réception de capacité comprise, en général, entre 16 et 100m³ pour stocker l'hydrogène liquide apporté et, avant de se connecter au réservoir, le camion effectue une mise à la terre. Ensuite, un flexible de dégazage et un autre de transfert du gaz liquéfié sont mis en place avec des étapes de balayage à l'azote effectuées pour s'assurer que l'hydrogène n'est pas mis en contact avec de l'air lors du dépotage.

L'hydrogène liquide peut ainsi être transporté et stocké aisément grâce à sa densité accrue (près de 70 kg/m³, tableau 1.3). Cependant, la réglementation limite parfois son utilisation à cause des périmètres de sécurité imposés qui sont très importants.

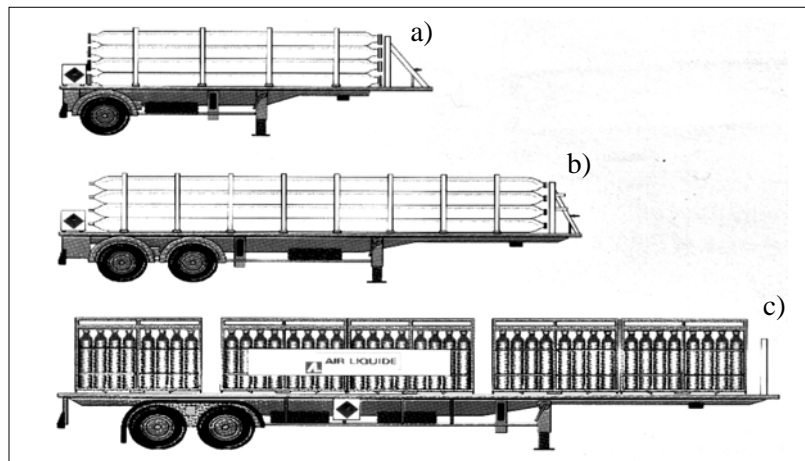


Figure 1. 5 : Transport des bouteilles d'hydrogène gazeux, [2]:
a) 1600Nm³ ; b) 3360 Nm³ ; c) 2460 Nm³.

L'hydrogène gazeux, comprimé à 200 bars, est également transporté et distribué par des camions, mais à faibles quantités (quelques centaines de kilogrammes). Ce mode de transport est adapté à des distances ne dépassant pas quelques centaines de kilomètres, et à des petites consommations en hydrogène (quelques kilogrammes par heure).

Le volume intérieur des bouteilles varie d'un litre à plus de 100 litres. Les bouteilles de 50L verticales peuvent être groupées en cadre de 28 bouteilles, tandis que celles de 560 ou 1128L sont fixées horizontalement sur des semi-remorques, (Figure 1.5). Malgré la faible quantité d'hydrogène transportée (jusqu'à 370 kg), le poids plein de la semi-remorque n'en demeure pas moins important (aux environs des 30 tonnes) [2].

Pour conclure, nous pouvons affirmer que le transport et le stockage d'hydrogène liquide et gazeux répondent à la demande industrielle d'aujourd'hui.

1. 6 Utilisation de l'hydrogène

L'utilisation d'hydrogène peut s'opérer soit, par des voies connues et maîtrisées, comme les moteurs thermiques, les turbines à gaz, les chaudières, les lanceurs de satellites en tant qu'ergol cryogénique etc., sous réserve de certaines modifications, soit par des voies nouvelles dont la pile à combustible, très bon convertisseur d'énergie est la plus prometteuse pour la production d'électricité et de chaleur. L'hydrogène pourrait aussi être utilisé pour produire des carburants de synthèse par hydrogénation de la biomasse ou, ajouté au gaz naturel, pour accroître son pouvoir calorifique.

Ces types d'application sont nouveaux pour les gaziers qui vendent des gaz pour leurs propriétés chimiques : oxydant, réducteur, inerte, synthèse.

Si l'hydrogène devient un vecteur d'énergie, la demande va fortement s'accroître et les infrastructures industrielles devront s'adapter, ainsi les gaziers ont un rôle majeur à jouer dans :

- La mise au point de générateurs à faible débit pour produire auprès du consommateur.
- L'extension du réseau de pipelines.
- La définition des unités de liquéfaction à faible coût.
- Le développement de technologies pour conditionner l'hydrogène sous pression ou sous forme liquide avec une ergonomie accrue (poids, volume, mise en œuvre).
- La proposition des règles de sécurité pour l'exploitation de l'hydrogène,

Un vecteur énergétique sophistiqué qui aurait les vertus de l'électricité et des énergies fossiles sans en avoir les inconvénients : seul l'hydrogène peut prétendre ressembler à ce portrait-robot et justifier un programme de recherche spécifique. Cependant, il devrait apporter des solutions significatives aux freins liés à la réglementation, au coût et à la logistique pour pouvoir s'imposer à terme et, être couplé à de nouvelles technologies telles que les piles à combustible connaissant actuellement de grands progrès et, qui feront l'objet d'étude de notre prochain chapitre.

CHAPITRE 2 GENERALITES SUR LES PILES À COMBUSTIBLE

La pile à combustible (**PAC**) est un convertisseur d'énergie qui fournit de l'électricité et de la chaleur à partir d'hydrogène et d'oxygène en utilisant un procédé thermochimique plutôt que la conversion thermomécanique traditionnelle. Le principe a été découvert vers les milieux du XIX^e siècle et, depuis cette époque, l'attrait porté à cette technique a été l'objet de mouvements de flux et de reflux. Un regain d'intérêt se manifeste pour cette technologie depuis le début des années 1990 en raison de la nouvelle donne énergétique qui se dessine (contexte de mondialisation et d'ouverture des marchés, sécurité d'approvisionnement à long terme, construction d'un développement énergétique durable, respect de l'environnement...).

Dans le présent chapitre, après un bref aperçu historique, nous rappelons le principe de fonctionnement des piles à combustible, nous décrivons également ses différents types avec leur état d'avancement. Enfin nous présentons, à travers quelques exemples, les grands domaines d'applications de ces piles.

2. 1 Historique sur les piles à combustible

2. 1.1 Découverte des piles [2, 10, 11, 12]

Le principe de la pile à combustible a été démontré en 1839 par un juge anglais, Sir William GROVE, chercheur amateur en électrochimie.

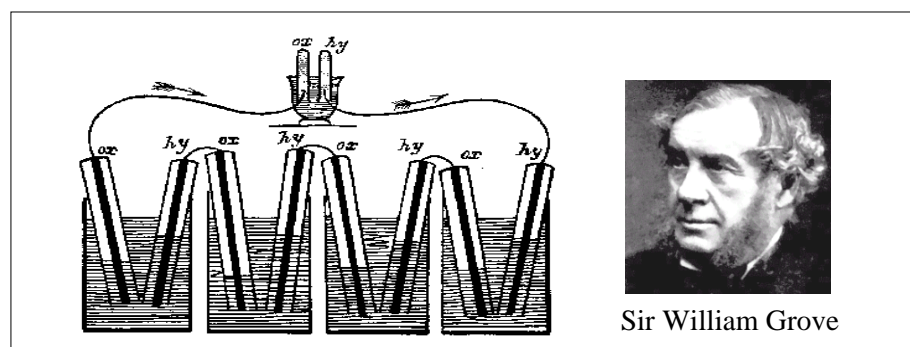


Figure 2. 1 : La pile à combustible de W. GROVE [12] :
Composée de quatre grandes cellules [10].

En réalisant la réaction inverse de l'électrolyse de l'eau (Figure 2.1), il a mis en évidence l'importance du contact à trois phases (gaz, électrolyte et platine), nécessaire à la production d'énergie. Ce qui se révélera plus tard être le précurseur de la pile à acide phosphorique (PAFC).

De rares chercheurs continuèrent de s'intéresser à cette technologie (W. W Jacques construisit, en 1895, la première pile à combustible de puissance 1,5 kW) tandis que se développaient les machines thermiques, les accumulateurs et les piles électriques.

En 1950, les travaux de F. T. BACON aboutissent à la réalisation du premier prototype industriel de puissance notable (quelques kW) pour des densités de courant de 1 A/cm^2 à 0,8V. Toutefois, la découverte et l'industrialisation de la dynamo mirent au placard la pile à combustible jusqu'aux années 1960 durant lesquelles ces générateurs font de véritables élans de développement dans les domaines d'utilisation industrielle :

- L'essai d'une pile de 20 kW par l'U.S.Navy capable de fonctionner à une profondeur de 6000 m.
- Les astronautes des capsules GEMINI consomment l'eau produite par les piles à combustible de leur vaisseau. Ce type de convertisseur efficace est d'ailleurs toujours employé dans le domaine spatial, grâce à son rendement élevé qui a, considérablement, diminué le poids des réactifs transportés.

2. 1.2 Projets de développement par continent [2, 8, 11, 12]

Le très fort développement des recherches sur les piles à combustible dans les années 1970 résulte de la première crise du pétrole de 1973, où les premières préoccupations environnementales font leur apparition comme conséquences de la forte croissance de la pollution automobile, ce qui a incité tous les laboratoires et industriels mondiaux à se lancer dans de nombreux travaux sur l'amélioration des véhicules (amélioration des moteurs à essence, véhicules hybrides et électriques...).

2. 1.2.1 En Amérique du nord

Les premiers prototypes de véhicules avec pile embarquée apparaissent aux Etats Unis dans les années 1970 avec une pile alcaline (AFC) de 15 kW alimentant un tracteur électrique, puis avec une pile de type AFC de 6 kW pour une voiture Austin A 40 à propulsion électrique associée; Par la suite, DuPont met au point, la membrane Nafion, qui a permis de relancer les piles à électrolyte polymère solide (PEMFC) propulsant les véhicules électriques et hybrides tels que les prototypes roulants de General Motors et Ford avec un stockage d'hydrogène à bord .

De nos jours, le secteur des piles bénéficie de plusieurs actions de développement par le financement des programmes de recherche, la création de centres et d'associations d'entreprises (U.S. Fuel Cell Council, California Fuel Cell Partnership), et la participation des universités mais aussi, du dynamisme d'entreprises pionnières (Ballard, Hydrogenics Corp. Ltd, H Power, DuPont, General Motors, Nuvera, Ford, Plug Power...).

Le programme PNGV (Partnership for a New Generation Vehicle) regroupant entre autres Daimler Chrysler et Ford vise à mettre au point des véhicules à faible consommation, entre autres un véhicule à pile alimenté en hydrogène.

Concernant les applications stationnaires, des installations de forte puissance (plusieurs MW) sont mises en place pour la production décentralisée d'électricité de même que pour la cogénération.

2. 1.2.2 En Europe

Les importantes recherches sur les piles à combustible en France, dans les années 1960-1975, ont mené à la réalisation des piles à méthanol et à hydrazine de 1 kW (Alstom) et des piles alcalines (AFC) à hydrogène/air (Electricité de France et Institut Français du Pétrole).

L'Europe se lance, plus tard, concrètement dans la technologie des piles avec les programmes JOULE, THERMIE et BRITE-EURAM dont les travaux portent sur la recherche de nouveaux matériaux, le stockage de l'hydrogène, le reformage et l'amélioration des performances des piles (rendement, durée de vie).

À partir du début des années 1990, les préoccupations environnementales liées à l'effet de serre relancent la recherche dans ce domaine. Le programme Eureka, visant à construire un bus basé sur une pile (AFC) et fonctionnant à l'hydrogène, est initié en 1991. En 1994, les premières installations stationnaires de cogénération sont mises en place en Allemagne. Parallèlement, Daimler construit son premier véhicule avec pile embarquée : la NECAR (New Electric Car). La France lance son programme VEP (Véhicule Propre et Econome) et participe activement avec la création d'un réseau (PACO) en 1999 et l'implication de nombreuses entreprises, centres de recherche et universités telles que : PSA, Renault, EDF, Lyonnaise des eaux, CEA, CNRT...

En 2001, les piles à combustible ont profité de l'accélération des recherches et d'un certain consensus sur leur intérêt dans les applications stationnaires, mobiles et portables.

2. 1.2.3 Au Japon

Soutenu par le MITI (Ministry for International Trade and Industry) et par l'AIST (Agency of Industrial Science and Technology), les programmes en faveur des piles ont commencé en 1981 avec le programme Moonlight, suivi dès 1992 du programme New Sunshine, concernant les installations stationnaires.

À l'issue de cet historique, nous pouvons dire que l'essor dans le domaine des piles à combustible est stimulé d'un côté par les grands groupes industriels de divers secteurs : économique, militaire voire spatiale, qui investissent des sommes faramineuses en recherche et développement, et de l'autre, par l'offre commerciale prometteuse et diversifiée pour tous types d'applications permettant l'installation de plusieurs MW par an.

2. 2 Principe de fonctionnement

Une pile à combustible est un système électrochimique qui convertit directement l'énergie chimique d'une réaction d'oxydoréduction en énergie électrique avec production simultanée d'électricité, d'eau et de chaleur selon la réaction chimique globale universellement connue (cas d'une pile hydrogène/oxygène) [1, 2, 10] :



Elle fonctionne donc sur le mode inverse de l'électrolyse de l'eau. La réaction s'opère au sein d'une structure essentiellement composée de deux électrodes garnies de catalyseur :

- L'électrode négative ou la cathode : pour la réduction de l'oxygène,
- L'électrode positive ou l'anode : pour l'oxydation de l'hydrogène ;

Ces deux électrodes sont séparées par :

- L'électrolyte : matériau qui bloque le passage de électrons mais laisse circuler les ions, (Figure 2.2).

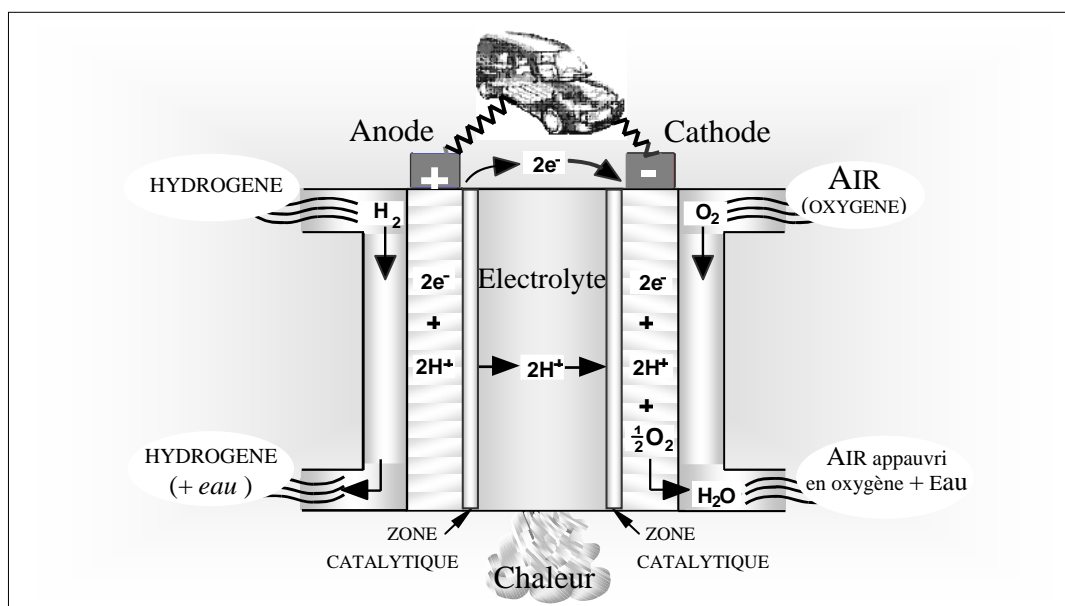


Figure 2. 2 : Schéma de principe d'une pile à combustible (hydrogène / oxygène) à membrane polymère acide (type PEMFC) [12].

La cathode est alimentée en oxygène (ou plus simplement en air, enrichi ou non en oxygène) de manière contrôlée et dans laquelle nous assistons à la réduction cathodique de ce comburant. Au niveau de l'anode, nous amenons le combustible (l'hydrogène, méthanol...), où l'atome d'hydrogène réagit et libère 2 électrons (oxydation) qui circulent dans un circuit électrique de charge (un moteur électrique, par exemple) reliant l'anode à la cathode.

L'électrolyte assure la diffusion d'un ion intermédiaire de la réaction (H^+ ou OH^- selon l'électrolyte). Elle empêche également le passage des électrons ainsi que le mélange de l'hydrogène contenu à l'anode avec l'oxygène contenu à la cathode.

Dans la pratique un élément de pile à combustible (cas décrit ci-dessus) produit une tension assez faible (entre 0,6 et 1 V). Un grand nombre de piles élémentaires doivent donc être associées pour obtenir une puissance satisfaisante. Les raccordements électriques au niveau des plaques bipolaires s'effectuent en série ou en parallèle pour l'ajustement de la tension et de l'intensité en fonction des besoins.

Nous désignons souvent par « Stack » l'ensemble des cellules électrochimiques élémentaires qui constituent une pile à combustible [8, 13], (Figure 2.3).

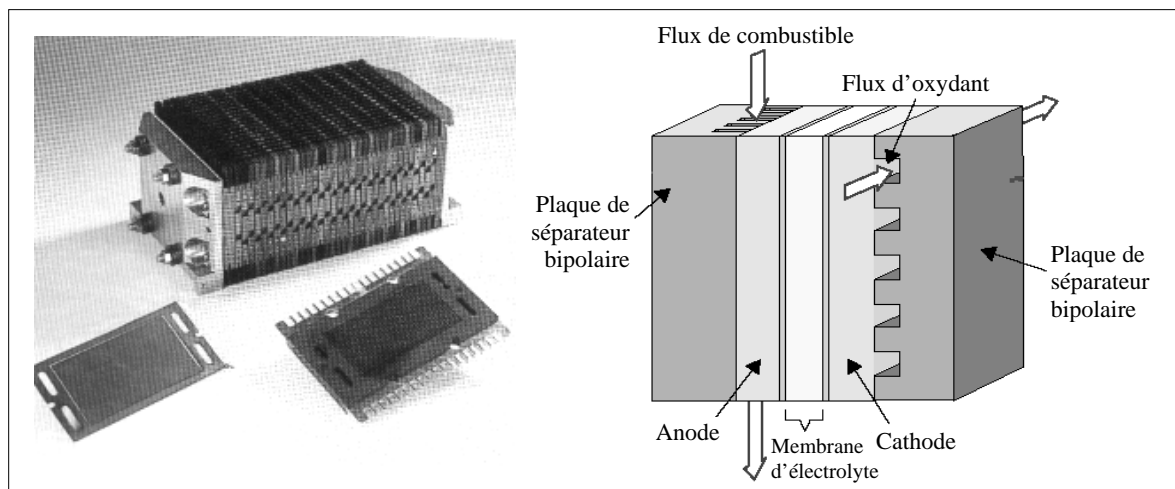


Figure 2.3 : Assemblage de cellules dans un module de pile à combustible (gauche), [1] avec schéma d'une cellule élémentaire (droite), [10].

2.3 Caractéristiques des piles

2.3.1 Avantages

Les piles à combustibles sont fréquemment présentées comme la solution du futur dans les domaines de production d'énergie électrique et de l'automobile. Cet attrait est justifié par les nombreux avantages ci-dessous, [2, 12]:

2.3.1.1 Rendement énergétique élevé

Le rendement électrique net n'est pas soumis aux limitations du cycle de CARNOT et varie entre 50 et 80% selon le type de pile utilisée [2]. En plus, à charge partielle dans les petites unités, ce rendement ne diminue pas et peut même s'accroître.

Pour les véhicules automobiles, nous avons les chiffres des bilans du puits à la roue (Well to Wheels) suivants [12]:

- ▶ Le rendement d'un moteur thermique (du réservoir à la roue) se situe entre 21 et 24% (essence ou diesel), et est susceptible d'être amélioré jusqu'à 23 à 27%;
- ▶ Le rendement d'un moteur électrique hybride varie de 22 à 33% selon le carburant ;
- ▶ Le rendement d'une PEMFC varie de 33% (reformage de l'essence), à 38 % (reformage du méthanol) et jusque 50% (hydrogène gazeux).

Pour les applications stationnaires, le rendement énergétique global est bien plus élevé grâce à la cogénération, ainsi des valeurs de 85 à 90% peuvent être facilement atteintes [12].

2. 3.1.2 Emissions limitées

Les systèmes piles à combustible, atout dans la lutte contre la pollution (gaz à effet de serre définie par la Conférence de Kyoto (1997)) [1], leurs émissions dépendent étroitement du carburant utilisé et de son origine qui renferme : les gaz à effet de serre (CO_2), le CH_4 , le CO, les NO_x (oxydes d'azote), les particules carbonées, le SO_2 et les poussières [12].

Selon les gaz d'émissions, une classification a été faite pour la propulsion automobile, dans laquelle les véhicules utilisant de l'hydrogène ne produisent rien et sont classés ZEV (Zero Emissions Vehicles), et ceux ayant un reformeur à méthanol ou éthanol ne diffusant qu'un peu de CO_2 , CH_4 , CO (inférieure à 10 ppm) seront des ULEV (Ultra Low Emission Vehicles) ou SULEV (Super Ultra Low Emission Vehicles) [14], mais si toute la chaîne du « puits à la roue » doit être envisagée, les gains sont surtout au niveau du CO, NO_x et poussières.

2. 3.1.3 Diverses températures de fonctionnement

Les piles de faible température de fonctionnement ont un meilleur rendement électrique, et sont plus adaptées aux applications mobiles ou portables n'employant pas de la chaleur produite. En revanche, pour les piles de température plus élevée, nous pouvons utiliser cette chaleur dans des applications domestiques ou industrielles voire un couplage avec turbine.

2.3.1.4 Modularité

Les piles sont constituées de cellules élémentaires mises en parallèle ou en série pour obtenir la puissance voulue. Il est donc possible, en adaptant le nombre de cellules ainsi que la surface de chacune, d'obtenir toute la gamme de puissances possibles entre 1 kW et plusieurs MW. Pour les très petites puissances, nous avons recours à des techniques de miniaturisation.

2.3.1.5 Absence de parties rotatives

L'absence de mouvement de parties rotatives dans le coeur de la pile à combustible lui évite l'usure mécanique. Sa tenue chimique et sa longévité restent encore à prouver car les prototypes actuels ont une durée de vie encore limitée.

2.3.1.6 Silencieuses

Lors de leur fonctionnement, les piles sont silencieuses: dans les systèmes PAC, seuls certains organes comme les compresseurs, les pompes, le système de ventilation produisent un léger bruit (à titre d'exemple, les émissions sonores de la pile PAFC PC25 de ONSI Corp sont de 58dB à 10m), ce qui permet l'insertion des piles stationnaires en milieu urbain et rend les véhicules à piles très silencieux.

2.3.2 Verrous scientifiques et technologiques

Si les piles semblent être si intéressantes, il reste tout de même un certain nombre de verrous qui doivent encore sauter pour assurer la compétitivité de ces nouveaux convertisseurs d'énergie. Parmi les problèmes à résoudre, nous citons [1, 2, 11] :

2.3.2.1 Coût

À l'heure actuelle, le prix de revient représente le problème majeur de cette technologie. Dans les applications automobiles, le prix des piles est 100 fois supérieur à celui assurant la compétitivité et est de 20 à 50% trop élevé pour les applications stationnaires.

Ce coût se répartit : 1/3 pour le reformeur, 1/3 pour l'onduleur DC/AC et 1/3 pour la pile où le tiers de cette tranche correspond au stack, le reste étant pour les auxiliaires, [12].

2.3.2.2 Poids et volume

À l'inverse des installations stationnaires, ces deux aspects constituent un sérieux handicap pour les applications automobiles. D'une part, il faut que la pile et le module de stockage de carburant soient intégrables au véhicule sans affecter l'habitabilité. D'autre part, le système pile ne doit pas être trop lourd au risque d'affecter les performances du véhicule.

2.3.2.3 Durée de vie

La plupart des piles sont encore des prototypes et, donc peu de renseignements sur leur durée de vie sont annoncés. Les contraintes diffèrent selon le domaine d'application: quelques milliers d'heures pour l'automobile et, au moins 40 000 heures pour le stationnaire [12].

2.3.2.4 Carburant de substitution

La question du carburant pour piles dans les applications automobiles n'est pas encore tranchée définitivement, et il reste à savoir lequel servira d'intermédiaire:

- Le méthanol, qui ne durera peut être que 10 ans, impose la mise en place de tout un système de production, de transport et de distribution.
- L'essence, doit avoir une faible teneur en soufre et un reformeur adéquat de point de vue compacité, poids et temps de démarrage.
- L'utilisation de l'hydrogène suppose avoir résolu le problème du stockage à bord et pris des précautions devant les risques d'explosion.

2.4 Différents types de piles à combustible

2.4.1 Présentation et applications

Le tableau 2.1 regroupe les principales caractéristiques des piles à combustible les plus répandues.

Nous pouvons constater que l'hydrogène est le combustible le plus utilisé pour la plupart des piles fonctionnant à basse et moyenne température, ceci est dû principalement à sa grande réactivité.

Tableau 2. 1 : Caractéristiques des différents types de piles à combustible [2, 12].

TYPE DE PILE	AFC	PEMFC	PAFC	MCFC	SOFC
NOM	Alkaline Fuel Cell	Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell	Phosphoric Acid Fuel Cell	Molten Carbonate Fuel Cell	Solid Oxide Fuel Cell
ELECTROLYTE	Solution KOH (liquide)	Polymère perfluoré $\text{SO}_3^- \text{H}^+$ (solide)	Acide phosphorique PO_4H_3 (liquide)	Sel fondu Li_2CO_3 / K_2CO_3 (liquide)	Céramique ZrO_2 / Y_2O_3 (solide)
CATALYSEUR	Platine	Platine	Platine	-	-
IONS DANS L'ELECTROLYTE	OH^-	H^+	H^+	CO_3^{2-}	O^{2-}
NIVEAU DE TEMPERATURE	60 - 90°C	80 - 100°C	160 - 220°C	620 - 660°C	750 - 1000°C
COMBUSTIBLE	H_2	H_2 (pur ou reformé)	H_2 (pur ou reformé)	H_2 (pur ou reformé)	H_2 (pur ou reformé)
OXYDANTS	O_2 (Pur)	Air	Air	Air	Air
DOMAINES D'APPLICATION	Spatial, transport	Portable, transport, stationnaire	Transport, stationnaire	Stationnaire, cogénération	Transport (APU), stationnaire
RENDEMENT ENERGETIQUE	55 - 60%	32 - 40%	36 - 45%	50 - 60%	45 - 50% 70% en cogénération
NIVEAU DE DEVELOPPEMENT	Utilisée	Prototypes	Technologie mûre	Prototypes	Prototypes

Les piles évoquées plus haut peuvent être classées suivant de nombreux critères [2]:

- Température de fonctionnement ;
- Nature de l'électrolyte : solide ou liquide, acide ou base... ;
- Charge de l'ion diffusant dans l'électrolyte : positive pour l'électrolyte acide et négative pour l'électrolyte alcalin ;
- Type de combustible ;
- Pile à oxydation directe ou indirecte.

À présent, deux principales classifications sont communément adoptées : la première étant basée sur la nature de l'électrolyte, qui donne son nom à la pile, et dans laquelle nous distinguons les cinq types de piles à combustible suivants [2]:

1. Piles à électrolyte alcalin (**AFC**: Alkaline Fuel Cell).
2. Piles à électrolyte polymère solide (**PEMFC**: Proton Exchange Membrane Fuel Cell).
3. Piles à acide phosphorique (**PAFC**: Phosphoric Acid Fuel Cell).
4. Piles à carbonate fondu (**MCFC**: Molten Carbonate Fuel Cell).
5. Piles à oxydes solide (**SOFC**: Solid Oxide Fuel Cell).

La seconde classification s'appuie sur leur température de fonctionnement et connaît deux grandes catégories [8, 12] :

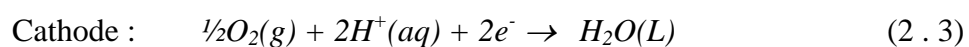
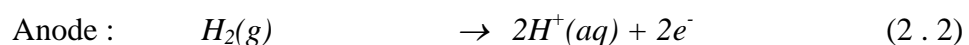
1. Les piles fonctionnant à basse température : PEMFC, DMFC, AFC et PAFC ;
2. Les piles fonctionnant à haute température : SOFC et MCFC.

2.4.2 Piles à combustible «PEMFC» [10, 12, 15]

2.4.2.1 Présentation

Les piles PEMFC (Proton Exchange Membrane Fuel Cell) concentrent actuellement le plus gros effort de recherche dans le monde. Elles fonctionnent à des températures relativement basses (entre 80 et 100°C) et à des pressions de 1 à 5 bars. Elles portent également d'autres noms : SPFC (Solid Polymer Fuel Cell), SEFC (Solid Electrolyte Fuel Cell), PEFC (Polymer Electrolyte Fuel Cell), IEMFC (Ion Exchange Membrane Fuel Cell),...

De façon simplifiée, les réactions mises en jeu au sein des PEMFC sont les suivantes [12]:



2.4.2.2 Constituants

Ces piles sont constituées par (voir Figure 2.4), [10]:

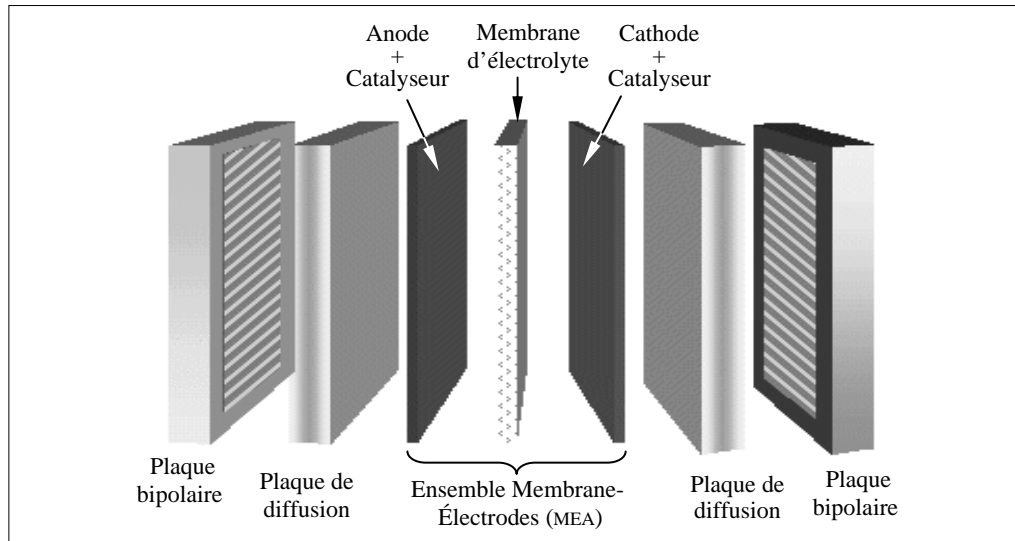


Figure 2.4 : Les différents composants d'une pile à membrane échangeuse de protons, [15].

2.4.2.2.1 Electrolyte

Celui-ci est une membrane polymère solide de type acide, les ions négatifs sont retenus dans sa structure et seuls les ions d'hydrogène H^+ sont mobiles et libres de transporter la charge positive à travers cette membrane, de l'anode vers la cathode.

Le premier modèle et qui reste aujourd'hui la référence, est un polymère perfluoré de la firme DuPont de Nemours : le Nafion. Pour garantir une bonne conductivité ionique, cette membrane doit fonctionner à une température comprise entre 60 et 90°C et doit toujours rester saturée d'eau pour permettre le déplacement des ions H^+ .

2.4.2.2.2 Electrodes

Sièges des réactions d'oxydation et de réduction, elles sont recouvertes de platine, pur ou allié à un élément de transition (Cr, Mn, Ni, Fe), qui joue le rôle de catalyseur dans la réaction. En effet, seul ce métal noble possède l'activité électrolytique suffisante et peut résister durablement à la corrosion (dissolution) dans cet environnement chimique très acide.

2.4.2.2.3 Plaques de diffusion (BACKINGS)

Entourant les électrodes, elles ont un triple rôle, [10, 12]:

- ▶ Diffuser les gaz sur les électrodes,
- ▶ permettre le transfert des électrons,
- ▶ assurer la gestion de l'eau (humidification de la membrane + évacuation).

2.4.2.2.4 Plaques bipolaires

En ce qui concerne le cœur de la pile, elles permettent :

- La distribution des gaz,
- L'évacuation de l'eau,
- La collecte du courant [10, 12].

L'autre rôle de ces plaques est d'assurer la connexion entre les piles élémentaires qui composent les piles à combustible.

2.4.2.3 Avantages

Le premier avantage des piles PEMFC est la température de fonctionnement relativement basse qui offre:

- Une technologie simplifiée grâce à des contraintes thermiques peu importantes.
- Une mise en température aisée de la membrane et donc un démarrage rapide de la pile à combustible (très adapté au secteur automobile).
- L'évacuation aisée de la chaleur à température ambiante.
- D'envisager aisément une bonne durée de vie (3000 à 4000h pour les transports en 2007) [1, 12].

L'autre avantage provient de la technologie «tout solide» qui donne :

- ▶ Une bonne compacité de la pile à combustible.
- ▶ Une durée de vie légèrement supérieure aux piles à électrolyte liquide, [12].

2.4.2.4 Principaux axes de recherche [1, 12]

2.4.2.4.1 Augmentation de la température de fonctionnement

Les piles actuelles à membranes protoniques de type Nafion, ne peuvent travailler qu'à une température maximale de 90°C. A des températures supérieures à ces niveaux, les membranes ne peuvent plus assurer une conductivité convenable des protons à cause de leur inaptitude à retenir l'eau. Ce qui diminue sensiblement leur rendement.

Le développement de nouvelles membranes fonctionnant à des températures comprises entre 150 et 200°C permettrait d'augmenter l'activité des catalyseurs des électrodes, d'éviter leur empoisonnement par le monoxyde de carbone (CO), et de récupérer la chaleur générée par un système de cogénération.

2.4.2.4.2 Réduction du coût des membranes

Cette nécessité pousse également au développement de nouvelles membranes, car le coût excessif des membranes de type Nafion (environ 700 €/m², [1]), n'est pas acceptable pour une technologie qui demande une dizaine de mètres carrés de membranes pour réaliser une pile d'environ 50 kW.

2.4.2.4.3 Recherche d'alternatives au platine

Compte tenu du prix du platine, on cherche à diminuer son emploi au sein des piles PEMFC. De nombreuses recherches ont porté sur la réduction des quantités de platine aux électrodes. Ainsi, la recherche s'oriente maintenant vers la rationalisation des dépôts de platine par la modification de l'architecture des électrodes, car il a été démontré que seulement 20 à 30% de ce métal était vraiment actif [1, 12, 15] ou par l'emploi d'alliages de platine avec d'autres métaux, voire la pressurisation des gaz réactifs dans la pile.

2.4.2.4.4 Réduction des coûts au niveau des plaques bipolaires [1]

Les plaques bipolaires doivent répondre à de nombreuses contraintes : une bonne conductivité, une bonne inertie chimique par rapport à l'eau et aux acides, ainsi qu'une très faible perméabilité à l'hydrogène. Elles doivent également être très résistantes à la corrosion et être légères.

Les matériaux employés actuellement sont à base de graphite haute densité et sont difficiles et très coûteux à réaliser. Il sera donc nécessaire de trouver des nouveaux modes de fabrication et d'employer des matériaux bon marché, comme l'inox.

2.4.2.4.5 Gestion de l'eau [12, 15]

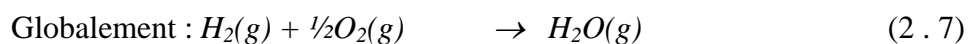
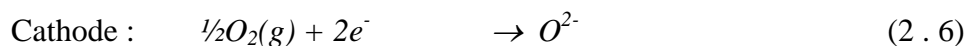
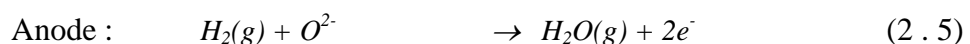
La gestion de l'eau représente un point clé de la membrane qui doit constamment être humide sans que celle-ci ne devienne excessive ni insuffisante. L'eau, autant que produit de fonctionnement de la pile de type PEMFC, doit être évacuée à l'extérieur. Toutefois, il est primordial que l'air et le carburant soient correctement humidifiés pour maintenir la membrane convenablement hydratée.

2.4.3 Piles à combustible «SOFC» [1, 6, 12, 15]

2.4.3.1 Présentation

Les piles SOFC (Solid Oxide Fuel Cell) semblent recueillir une certaine unanimité en terme de potentialités techniques et d'applications. Elles fonctionnent à des températures très élevées comprises entre 700 et 1000°C.

Les réactions mises en jeu au sein des SOFC prennent la forme suivante :



2.4.3.2 Composants

2.4.3.2.1 Electrolyte

Les piles SOFC ont un électrolyte solide de type céramique, le plus souvent, il s'agit de zircone stabilisée à l'yttrium de formule $(ZrO_2)_{1-x}(Y_2O_3)_x$. A température élevée (entre 800 et 1000°C), l'électrolyte conduit les ions O^{2-} produits de la cathode vers l'anode. Il doit aussi empêcher le passage des électrons tout en ayant une bonne résistance mécanique et chimique.

2.4.3.2 Electrodes

Dans ce type de piles, les électrodes sont de type poreux pour permettre un accès rapide des gaz aux sites : L'anode est très souvent un cermet (céramique métallique) à base de nickel dispersé sur de la zircone stabilisée. A la cathode, le catalyseur est un système d'oxydes de structure perovskite à base de terre rare et d'un métal de transition. Il s'agit en général, du manganite de lanthane dopé au strontium: $(LaSr)MnO_3$.

2.4.3.3 Plaques bipolaires

Les plaques bipolaires (ou interconnecteurs) jouent le même rôle que pour les piles PEMFC. En raison du niveau de température élevé, elles doivent avoir une bonne résistance en milieu oxydant et réducteur : c'est le cas des chromites de lanthane dopés aux strontium ou au calcium dans lesquels s'insère parfois du nickel ou du cobalt. Pour les configurations planes, des matériaux métalliques à base de chrome sont généralement adoptés.

2.4.3.3 Différents types de structure

Il existe quatre structures, ou géométries (Figure 2.5), pour les piles SOFC [6]:

- ▶ La technologie planaire,
- ▶ La technologie monolithique,
- ▶ La technologie tubulaire,
- ▶ La technologie de Sulzer Hexis.

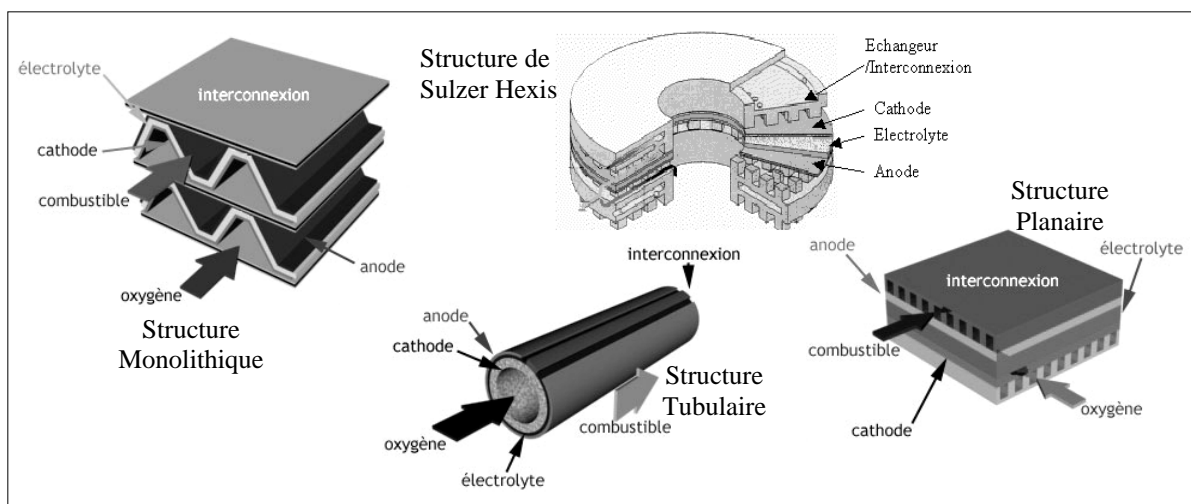


Figure 2.5 : Les quatre familles technologiques des piles SOFC [6, 12].

2. 4.3.4 Avantages

La température de fonctionnement élevée des piles SOFC offre plusieurs avantages :

- La possibilité de fonctionner avec divers carburants : hydrogène, gaz naturels, ou hydrocarbures liquides et charbon avec conversion préalable en hydrogène, soit au sein de la pile, soit dans un reformeur en amont de la pile ;
- Une insensibilité à la présence de CO dans l'hydrogène ;
- La fourniture d'une chaleur élevée facilement exploitable en cogénération avec ou sans turbine à gaz. Le rendement global peut alors atteindre 80 %, [12].

2. 4.4 Autres types de piles à combustible

2. 4.4.1 Piles «AFC» [6, 12]

La pile AFC (Alkaline Fuel Cell) est utilisée depuis les années 50 : elle se trouvait à bord des premiers vols spatiaux habités. Depuis, elles ont été utilisées dans les applications spatiales (Apollo), automobiles et militaires (sous-marins et véhicules armés).

L'électrolyte de la pile AFC est liquide de type alcalin, en général de la potasse (ou hydroxyde de potassium) KOH. Sa température de fonctionnement varie autour de 80-90°C, mais celle-ci peut être plus élevée pour un fonctionnement sous pression (piles Bacon, jusqu'à 200 - 230°C) ou avec un électrolyte plus concentré (piles Apollo).

Un inconvénient majeur de la pile alcaline est la sensibilité de l'hydroxyde de potassium au dioxyde de carbone. Il est donc impératif d'utiliser de l'hydrogène très pur après vaporeformage d'un combustible hydrocarboné et d'éliminer ce dioxyde de carbone de l'air fourni à la cathode afin d'éviter la carbonatation de la potasse.

2. 4.4.2 Piles «PAFC» [6, 12]

Les piles PAFC (Phosphoric Acid Fuel Cell) sont l'un des types sur lequel nous avons à présent le plus d'expérience, car de nombreux modules ont été testés depuis le début des années 90.

L'électrolyte de ces piles est de l'acide phosphorique (PO_4H_3) et leur température de fonctionnement se situe entre 180°C et 210°C , d'où une meilleure tolérance vis à vis du CO (comparativement aux PEMFC). Cette température est contrôlée, grâce à un fluide circulant dans des plaques de refroidissement intercalées entre les cellules, pour éviter l'évaporation de l'électrolyte. Néanmoins, sur une longue durée de marche, nous observons des pertes en acide.

L'inconvénient de cette pile est la solidification de son électrolyte à 42°C avec accroissement de volume ; il est donc nécessaire, en cas d'arrêt, de la maintenir à une température minimale de 45°C pour éviter la détérioration de ses électrodes.

La technologie PAFC a aujourd'hui presque atteint son sommet de développement et possède une grande fiabilité (le fonctionnement pendant 40 000 heures étant prouvé). Par contre ses développements potentiels ne sont pas considérés comme très importants.

2.4.4.3 Piles «MCFC» [6, 12]

Les piles MCFC (Molten Carbonate Fuel Cell) appartiennent à la famille des piles à haute température de fonctionnement (entre 600 et 700°C). Elles utilisent un électrolyte constitué par un mélange de carbonates de lithium et de potassium, dont les ions carbonates assurent le transfert électronique.

Tout comme pour les piles SOFC, la haute température de fonctionnement supprime tout effet inhibiteur du CO, et le combustible peut être directement reformé sur l'anode.

Les difficultés majeures sont d'ordre technologique. En effet, des problèmes de corrosion d'électrodes et d'étanchéité des cellules sur ce type de pile se posent.

Compte tenu de leurs caractéristiques, nous estimons quelquefois que les piles à carbonates fondus pourraient entrer en concurrence avec les piles de type SOFC pour des applications stationnaires.

2.4.4.4 Piles «DMFC» [2, 6, 12]

Les DMFC (Direct Methanol Fuel Cell), relativement nouveaux, différent des autres piles où l'hydrogène est oxydé à l'anode, elles sont alimentées directement en méthanol et ont un électrolyte de type acide, soit en polymère, ou bien liquide. Avec un électrolyte alcalin, le CO_2 produit par l'oxydation du méthanol réagirait avec les ions hydroxyde.

L'avantage décisif des DMFC est le fait qu'elles fonctionnent, à basse ou moyenne température, directement au méthanol : un carburant certes toxique mais liquide à température normale, actuellement produit à partir de gaz naturel (c'est aussi possible à partir du pétrole, du charbon ou biomasse) et qui pourrait bénéficier de l'infrastructure existante pour l'essence.

Les effluents de la pile contenant du CO₂ nécessitent l'épuration des gaz d'échappement par traitement post catalytique avant leur rejet à l'atmosphère. Tout ceci ramène le rendement autour de 20%, rendement faible dont la DMFC a toujours souffert. Cependant, elle peut démarrer rapidement et répondre ainsi de façon satisfaisante aux variations de charge.

2.4.4.5 Autres types peu connus

Il existe d'autres piles à combustible, telles que:

- ▶ Regenerative or Reversible Fuel Cells (RFC).
- ▶ Zinc-Air Fuel Cells (ZAFC).
- ▶ Protonic Ceramic Fuel Cell (PCFC) [12].

Très peu d'informations sont disponibles sur ces piles qui semblent actuellement ne pas attirer l'attention de la recherche.

2.5 Domaines d'application des piles à combustible

Les marchés potentiels des piles à combustible apparaissent aujourd'hui multiples : ils sont généralement classés en trois grandes familles d'applications pour lesquels un brillant avenir est promis [1, 2, 11, 12]:

- Les applications stationnaires.
- Les applications portables.
- Les applications « transport ».

2. 5.1 Applications stationnaires [2, 11]

Face aux perspectives de déréglementation et de décentralisation du secteur d'énergie électrique, les piles à combustible peuvent représenter une solution à l'implantation de nouvelles lignes électriques dans les endroits isolés, saturés ou protégés et peuvent, par ailleurs, constituer des dispositifs de secours ou de sécurité fiables servant à alimenter des systèmes sensibles avec réduction du coût de transport et d'installation.

À la différence des autres applications (portables et automobiles), la taille et le poids des piles sont ici peu importants d'où la possibilité d'emploi de différents types de piles à combustible. Cependant, la pile à acide phosphorique (PAFC) est la seule ayant été le plus testée pour ce domaine. Au niveau de ce type de production, nous trouvons :

- Des petites piles PEMFC et SOFC de quelques kW pour les résidences (eau chaude, chauffage) ;
- Des systèmes plus importants (100, 200, 250 kW) avec les trois types de piles PAFC, SOFC et PEMFC ;
- Des plus grosses installations de cogénération (supérieures à 1 MW) qui ont plutôt été réalisées avec des SOFC et MCFC.

Dans les applications stationnaires, nous distinguons entre la production décentralisée avec la cogénération (apport simultané de courant et de chaleur) et la production centralisée d'électricité sans valorisation de la chaleur. Pour le marché stationnaire décentralisé, l'activité est centrée sur deux grands domaines [1, 2] :

- La production individuelle (domestique : 2 à 7 kW), où plusieurs projets sont en cours de réalisation : le générateur (HomeGen 7000) lancé par General Electric et Plug Power LLC, les programmes de IdaTech, General Motors et Dais Analytic Corporation...
- La production collective (200 kW à quelques MW), dans laquelle figure les projets de cogénérateurs du canadien Ballard avec ses deux pôles : européen (Alstom-Ballard) et asiatique avec le japonais Ebara,

En ce qui concerne la production centralisée d'électricité, il existe de différents types d'application pour les piles: les applications de secours, la production d'appoint reliée au réseau ou une production centralisée d'électricité pour lesquelles seules les piles « haute température », c'est à dire les MCFC et SOFC sont adaptées.

Dans ce secteur, un coût objectif est estimé autour de 750 à 1000 €/kW installé pour un système complet de puissance moyenne [2]. À noter que l'implantation de piles à combustibles destinés à cette application a déjà débutée en Europe et aux Etats-Unis.

2. 5.2 Applications portables [1, 2, 12]

Cette famille inclut l'ensemble des appareils électroniques (ordinateurs, téléphones, assistant de poche, unité de puissance...), qui consomment une puissance moyenne allant de 50 mW à 10 W [12] et connaissent une très forte croissance. Cependant, l'autonomie de leurs batteries constitue un handicap, même pour la plus performante, ion-lithium [1].

Caractérisées par leur faible température de fonctionnement, seules les deux piles PEMFC et DMFC sont susceptibles d'avoir des applications portables avec le principal défi : leur miniaturisation.

Avec une pile à combustible couplée à une batterie, objet de recherches importantes essentiellement aux Etats-Unis (Motorola, Manhattan Scientifics, MTI) et au Japon (Sony, NEC), l'autonomie ne sera limitée que par la taille du réservoir (hydrogène ou méthanol) dont la recharge donnera 5 à 10 fois plus d'autonomie qu'une batterie actuelle [2].

En ce qui concerne ce type d'application, nous estimons que le coût à atteindre devrait être d'1 €/W [12].

2. 5.3 Applications mobiles [1, 2, 12]

Le transport est le domaine d'application à l'origine du développement de la pile à combustible à partir du début des années 1990.

Nous distinguons, par la suite, entre les véhicules lourds (transport de passagers ou de marchandise) et ceux légers, à cause de leurs durées de vie différentes (3000h pour les véhicules légers et 50 000h pour les lourds, [12]) :

Dans le domaine des véhicules légers, de nombreux prototypes automobiles ont vu le jour depuis 1993 chez tous les grands constructeurs mondiaux [1, 2]:

- ▶ Les américains avec General Motors sur la base de Opel Zafira équipée d'une pile Ballard de 90 kW et Ford la Think FC5 alimentée par une pile Ballard au méthanol.
- ▶ L'allemand Daimler Chrysler, qui s'équipe en piles chez Ballard, a montré cinq prototypes Necar, le dernier Necar 5 est doté d'un reformeur en méthanol.
- ▶ Les japonais avec Toyota, Nissan avec sa Xterra, Mitsubishi, Mazda et Honda avec ses prototypes FCX-V3 et V4.
- ▶ Le français Renault avec son prototype Laguna, PSA Peugeot Citroën avec leurs deux démonstrateurs sur la base d'un Partner/Berlingo alimenté par pile Nuvera de 30kW.

La technologie utilisée dans ces applications sera essentiellement de type, [12] :

- PEMFC pour la propulsion du véhicule (20 à 50 kW),
- SOFC pour l'APU (Auxiliary Power Unit) : alimentation en électricité des appareils de bord : climatisation, appareils électroniques... (5 kW).

Le coût objectif de cette filière est de 100 €/kW pour l'ensemble de la chaîne de traction, dont environ un tiers pour la pile seule [1].

En ce qui concerne les véhicules lourds, plusieurs prototypes de bus ont été construits dès 1993 [1, 2] :

- ▶ Le canadien Ballard avec six bus testés, équipés d'une pile de 200kW ;
- ▶ L'allemand DaimlerChrysler et sa filiale Evobus avec son prototype : Nebus ;
- ▶ Le groupe Irisbus (Iveco et Renault) avec ses bus équipés d'une pile PEMFC de 60kW et travaillant en mode hybride avec une batterie, [13].

Compte tenu de la durée de vie attendue de ces véhicules, les coûts acceptables pour cette application sont de 150 à 200€/kW [2].

À côté des applications routières, certains constructeurs pensent à un tramway propre et sans caténaire, utilisant une pile à combustible. Il faut noter un intérêt croissant de constructeurs de navires pour la pile SOFC, pour une propulsion efficace et plus discrète, en particulier pour des applications militaires [1, 11].

À travers cette partie du mémoire, nous avons pu constater que depuis une quinzaine d'années, les piles à combustible connaissent un développement spectaculaire dans toutes les gammes de puissance et, leurs caractéristiques techniques sont très proches de celles attendues. Toutefois, certaines performances doivent encore être améliorées, comme la durée de vie et le coût.

Les recherches concernent également l'ensemble du système intégrant la pile à combustible et pas seulement le cœur de la pile, telles que : les technologies de reformage, les équipements comme les centrales d'air, les compresseurs ou les électrovannes, l'électronique de puissance, l'intégration et la gestion de l'ensemble du système, y compris le cas des systèmes hybrides...

Le chapitre suivant sera ainsi consacré à l'étude des caractéristiques générales de la technologie (PEMFC) et des systèmes auxiliaires placés autour de ce générateur électrochimique dont l'ensemble forme un groupe électrogène autonome de pile à combustible.

CHAPITRE 3

ANALYSE DE LA PILE « PEMFC » ET DE SES AUXILIAIRES PERIPHERIQUES

Pour des raisons liées à la fiabilité et à des contraintes d'industrialisation en grande série, le concept d'électrolyte solide est plus attractif que celui de l'électrolyte liquide.

C'est la raison pour laquelle se dessine aujourd'hui un consensus international pour privilégier, en particulier, dans le domaine du transport terrestre, la filière des piles à électrolyte polymère solide (PEMFC) essentiellement adoptée pour générer l'énergie de traction [13]. Toutefois les caractéristiques électriques de ce type de générateur induisent des contraintes sévères sur l'architecture fonctionnelle du véhicule et nécessitent l'examen de l'ensemble des paramètres affectant les performances de la pile, voire des développements spécifiques pour ses composantes.

Le présent chapitre sera dédié à l'analyse circonstanciée d'une pile de type (PEMFC) où nous passerons en revue ses différents constituants ainsi que les solutions techniques liées à son bon fonctionnement et présenterons par la suite, les divers composants périphériques placés en amont et en aval de ce réacteur (ou stack), notamment, à bord d'un véhicule, aussi bien que les générateurs auxiliaires et organes de commande et de régulation nécessaires à la gestion de sécurité et assurant l'efficacité énergétique de l'ensemble du « système pile »

3. 1 La technologie «PEMFC»

3. 1.1 Structure et conception

3. 1.1.1 Membrane

La technologie PEMFC se distingue par la nature de l'électrolyte utilisé qui est une membrane solide de polymère organique usuellement acide polyperfluorosulfonique. Un matériau typique de membrane, tel que Nafion commercialisé par la société américaine Dupont de Nemours, sa structure chimique se compose de trois régions distinctes [10], (Figure 3.1):

1. Le squelette hydrophobe (Téflon PTFE) comme épine dorsale de fluorocarbone, formé d'une centaine d'unités de $-\text{CF}_2-\text{CF}-\text{CF}_2-$ répétées en longueur,
2. La zone intermédiaire où les chaînes latérales, $-\text{O}-\text{CF}_2-\text{CF}-\text{O}-\text{CF}_2-\text{CF}_2-$, relie l'épine dorsale moléculaire à la troisième région,
3. La zone ionique hydrophile composée d'ions d'acide sulfonique, SO_3^-H^+ .

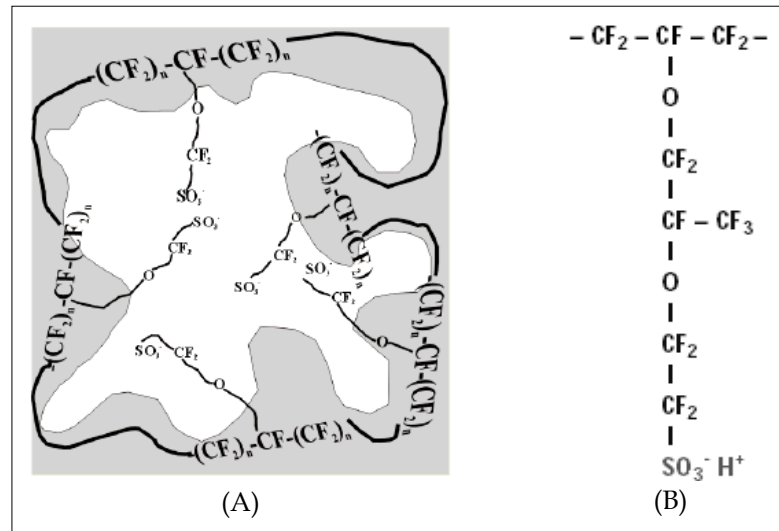


Figure 3. 1 : Composition chimique du Nafion avec ses trois différentes régions, (A) : [16], (B) : [10].

Les ions négatifs, SO_3^- sont attachés de manière permanente à la chaîne latérale et ne peuvent pas se déplacer. Cependant, quand la membrane devient hydratée en absorbant de l'eau, les ions d'hydrogène deviennent mobiles. Le mouvement d'ions se produit par des protons collés sur des molécules d'eau qui, attirés par les ions négatifs, sautent à cloche-pied d'un site SO_3^- vers un autre le long des pores de la membrane, (Figure 3.2). En raison de ce mécanisme, l'électrolyte solide hydraté est un excellent conducteur des ions d'hydrogène [17].

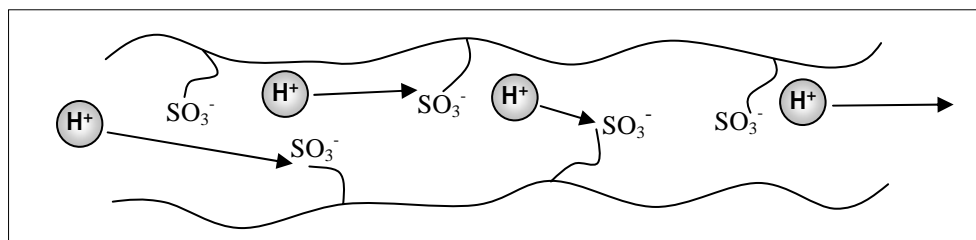


Figure 3. 2 : Mouvement des protons le long d'une membrane hydratée, [17].

Cette structure permet la libre immigration des protons et des molécules d'eau. Cependant, le matériau de Nafion demeure imperméable aux réactifs (hydrogène à l'anode et l'oxygène à la cathode) comme il représente un bon isolateur électronique.

L'épaisseur de la membrane s'étend de 12 à 210 μm pour les produits commerciaux [18]. Le coût élevé du Nafion (environ 700 €/m²) pousse à la recherche de nouveaux matériaux moins chers et de performances similaires au Nafion. Tel est le cas des polymères aromatiques hétérocycliques thermostables et les dianhydrides naphthaléniques [1].

3. 1.1.2 Ensemble membrane électrodes (MEA)

La MEA (Membrane Electrode Assembly) se compose d'une membrane et de deux électrodes ; une de chaque côté. Les électrodes des piles PEM sont poreuses permettant la diffusion des gaz pour approvisionner en réactifs les zones actives où le catalyseur est en contact avec le conducteur ionique. Les particules de catalyseur sont généralement en platine ou un alliage de platine avec d'autres métaux nobles [16], (Figure 3.3).

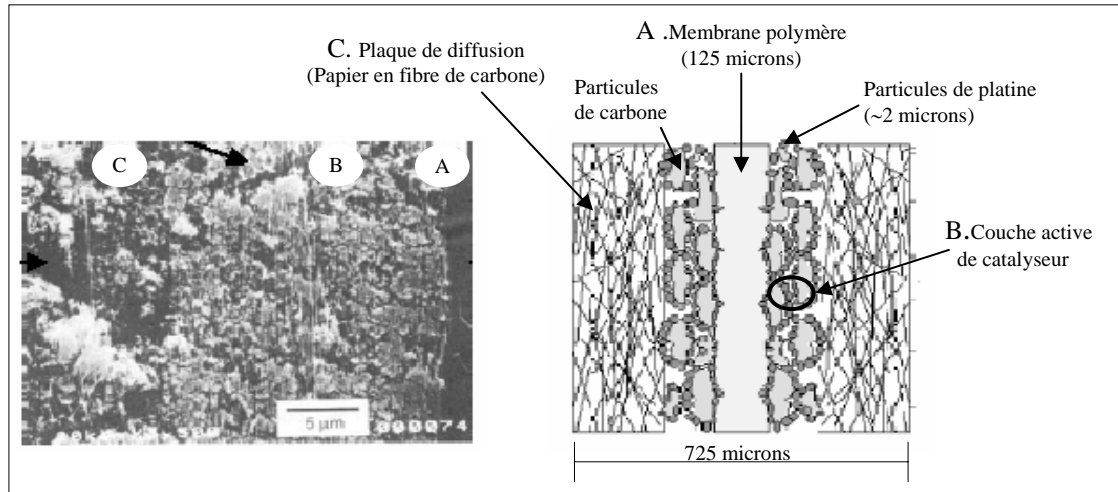


Figure 3. 3 : Ensemble membrane électrodes (MEA), [19].

Afin de pouvoir catalyser les réactions de cellules, les particules de catalyseur doivent être localisées de telle manière qu'elles forment une frontière triphasée. Les particules de catalyseur (platine) doivent être en contact avec les conducteurs électroniques (poudre de carbone) et protoniques (Nafion) tout en laissant des passages permettant aux réactifs d'atteindre les emplacements de catalyseur et aux produits de réaction d'être évacués.

La conductivité est assurée par un support de carbone sur lequel se fixent les particules de catalyseur. La limite de coexistence des trois phases est fabriquée par imprégnation de la zone catalytique (poudre de carbone/catalyseur) par du conducteur protonique (Nafion) sur plusieurs microns d'épaisseur, l'électrode étant ensuite pressée sur la membrane (Figure 3. 4).

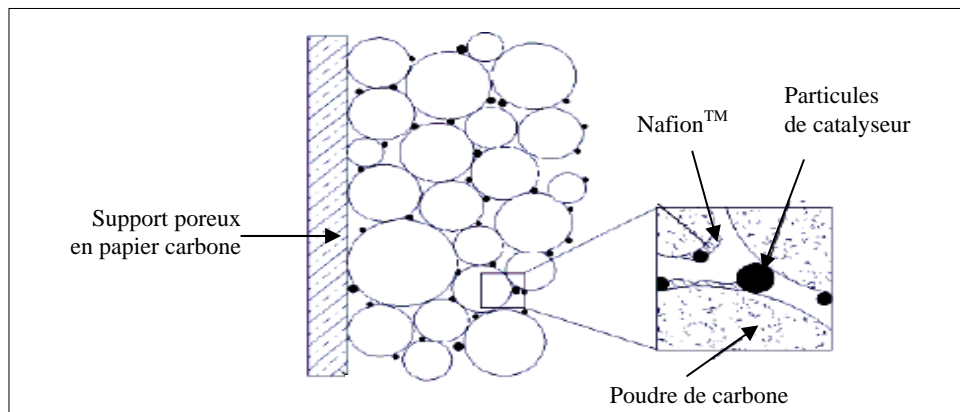


Figure 3. 4 : Couche de coexistence des trois phases au niveau de l'électrode, [16].

Cette opération permet ainsi aux espèces réactives d'atteindre les sites catalytiques sur un plus grand volume (surface géométrique X épaisseur de la couche active), d'où le nom d'électrodes volumiques. L'électrode doit donc être un réseau tridimensionnel poreux de particules de catalyseur, de conducteurs électroniques et protoniques et de passages ouverts pour le transport de gaz.

L'effort de réduire le chargement de catalyseur des électrodes a mené au développement des électrodes en couche mince qui consiste à déposer le catalyseur / support en carbone comme couche mince sur la surface de la membrane avec une méthode répandue dite « d'encre », « Ink method ». Avec cette méthode, un chargement de catalyseur de 0,1- 0,3 mg/cm² par électrode peut être obtenu tout en maintenant la bonne performance. L'épaisseur d'une électrode en couche mince varie entre 5 et 15µm [18].

Quand les électrodes sont de type couche mince, la plaque de diffusion de gaz ne contient aucun catalyseur. Un avantage additionnel de ce concept est que les couches peuvent être séparément diagnostiquées et optimisées.

La différence conceptuelle entre les électrodes de diffusion de gaz et les électrodes en couche mince est illustrée sur la figure suivante :

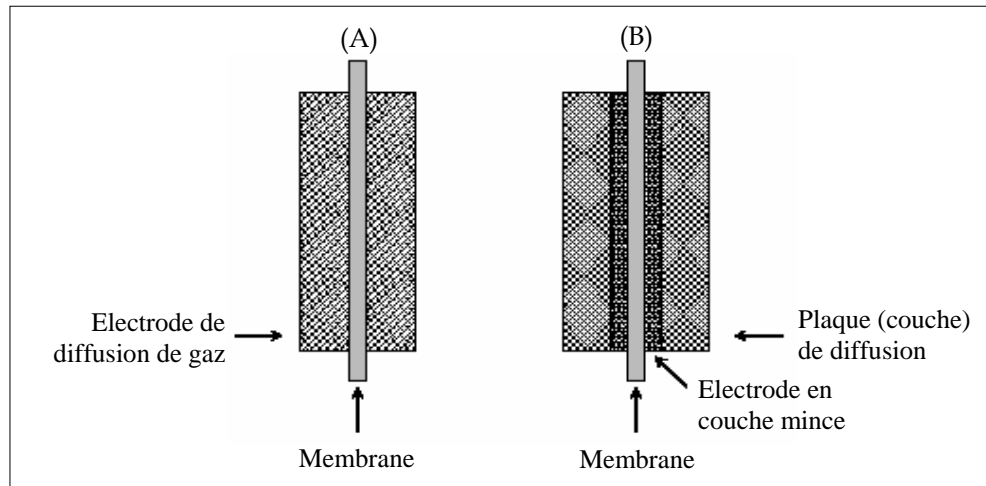


Figure 3. 5 : Deux structures différentes de MEA [18]. (A) : électrode de diffusion de gaz, (B) : électrode en couche mince.

3. 1.1.3 Plaques (couches) de diffusion de gaz (backings layer)

La couche de diffusion de gaz est faite d'un matériau suffisamment poreux et électriquement conducteur. Les matériaux les plus communs sont les fibres de carbone et les papiers de carbone commercialement disponibles et conçus de plusieurs fabricants.

La couche de diffusion de gaz fournit le contact électrique entre l'électrode et la plaque bipolaire du champ d'écoulement. Elle permet également la diffusion des réactifs jusqu'aux parties des électrodes, se situant sous les nervures de la plaque du champ d'écoulement. En même temps, elle doit laisser l'eau formée sur la cathode sortir aux canaux de gaz et permettre le passage de l'eau entre les courants de gaz et la surface de membrane.

La couche à proximité de l'électrode devrait avoir une structure plus fine pour s'assurer qu'autant de particules de catalyseur sont en contact électrique avec la plaque de diffusion de gaz. La couche est composée de la poudre de carbone, mélangée au PTFE et déposée sur la plaque de support.

Les plaques de diffusion de gaz sont caractérisées par leur épaisseur, la présence des régions hydrophobes et hydrophiles, la résistance sèche à l'écoulement et les propriétés électriques. La résistance à l'écoulement à l'état sec doit être réduite au minimum et la conductivité électrique maximisée. Pour ces raisons, des couches plus minces de diffusion de gaz sont généralement meilleures.

L'épaisseur typique des produits commerciaux est de 300-400 μm . Toutefois certains auteurs énoncent que l'épaisseur optimale de cette couche est approximativement 50 μm [18].

3. 1.1.4 Plaques bipolaires

Les plaques bipolaires, également appelées plaques de séparation ou plaques de champ d'écoulement, ont pour fonction la collecte du courant, la distribution et la séparation des gaz à l'anode et à la cathode.

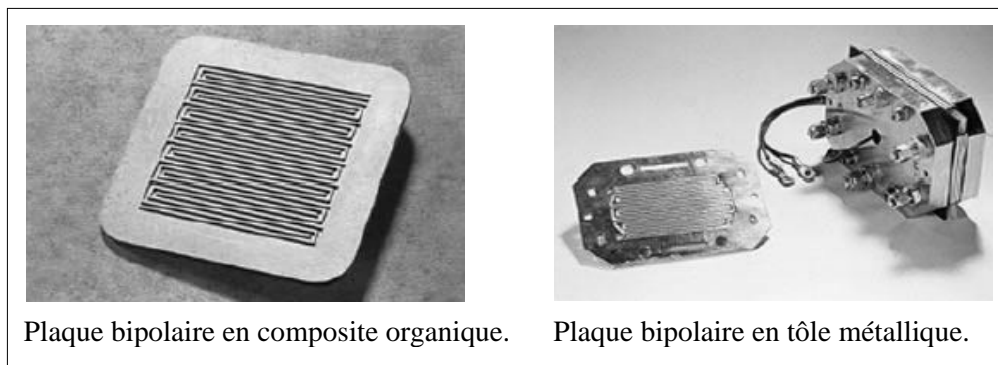


Figure 3. 6 : Deux nouveaux concepts de plaques bipolaires [1].

Les matériaux des plaques bipolaires doivent donc posséder un niveau de conductivité électrique et thermique suffisant, une imperméabilité au gaz supérieure à la membrane échangeuse de protons, une bonne inertie chimique et tenue mécanique vis à vis des fluides présents dans le cœur de la pile (eau, acide, oxygène...). Une face de la plaque bipolaire forme le compartiment anodique d'une cellule unitaire et l'autre côté constitue le compartiment cathode de la cellule adjacente.

Les plaques les plus courantes sont réalisées en graphite haute densité et les canaux de distribution des gaz sont obtenus par usinage. Cependant, ces plaques sont chères en termes de coûts du matériau et des procédés de fabrication. C'est pourquoi, de nombreux développements sont entrepris, notamment vers l'élaboration de deux nouveaux concepts de plaques bipolaires, (Figure 3.6) :

a . Les composites organiques : dont le principe de conception repose sur l'utilisation de charges (carbone, graphite...) dispersées dans un matériau thermoplastique ou thermodurcissable.

b . Les tôles métalliques : réalisées à base de métaux et alliages, et plus particulièrement les aciers inoxydables, sous forme de feuilles minces, mises en forme par emboutissage.

3. 1.1.5 Canaux de gaz

Les plaques bipolaires ont typiquement des canaux d'écoulement sur leurs surfaces dont le rôle est d'assurer une répartition homogène des gaz sur les électrodes afin de garantir une utilisation optimale de leur surface active.

La géométrie du canal et le sens d'écoulement diphasique (eau/gaz) peuvent être différents sur l'une des électrodes par rapport à l'autre et avoir lieu à co-courant, à contre-courant ou même à flux croisés. Le choix et l'optimisation de la géométrie du champ d'écoulement des plaques bipolaires affectent fortement les performances de la pile PEM, en particulier, la gestion de l'eau et la distribution des gaz aux électrodes.

Plusieurs types de géométrie de champ d'écoulement ont été proposés et discutés dans la littérature. Une liste non exhaustive de types de base est présentée ci-dessous :

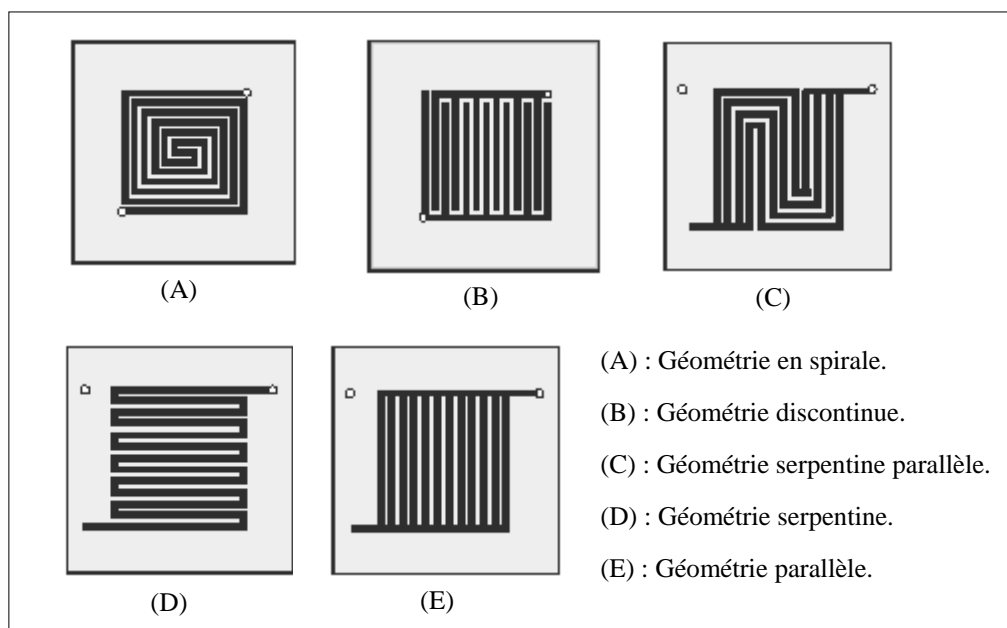


Figure 3. 7 : Quelques géométries de base des canaux de gaz [18].

Outre le choix de la géométrie de base, la taille des canaux et la surface des nervures entre les canaux doivent aussi être considérées. La largeur des canaux et des nervures affecte l'efficacité de diffusion des gaz et de la gestion de l'eau ; surtout sur la cathode. La résistance de la membrane à la différence de pression dépend également de la largeur du canal [18].

3. 1.2 Issues techniques

Le schéma 3.8 récapitule les principaux phénomènes et leurs directions d'évolution dans une PEMFC.

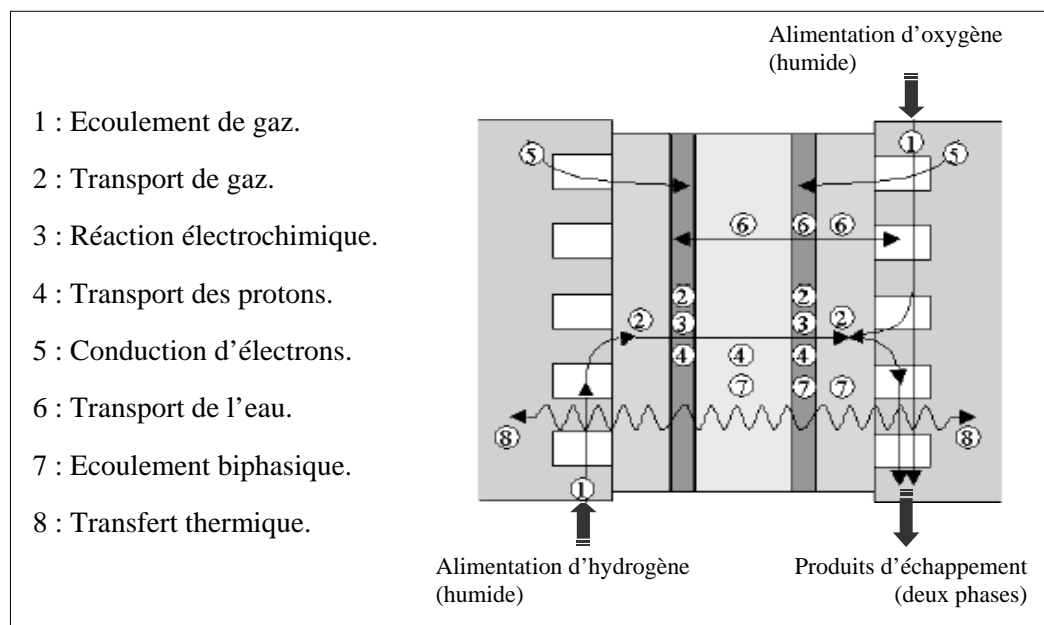


Figure 3. 8 : Principaux phénomènes au sein de la cellule PEMFC [19].

Le fonctionnement des piles PEM est affecté par plusieurs paramètres. Ainsi, pour assurer la bonne opération des cellules, les questions suivantes doivent être abordées:

3. 1.2.1 Distribution des réactifs

La concentration de chaque réactif à l'interface entre les canaux de gaz et les électrodes doit être uniformément répartie pour éviter des pertes dues à la polarisation de concentration.

3. 1.2.2 Gestion de l'eau

Afin d'assurer la bonne conductivité des protons, la membrane de polymère doit rester hydratée. Il est également nécessaire d'éviter d'endommager la structure de la membrane. Cependant, trop d'eau pourrait avoir comme conséquence la noyade « Flooding » dans les électrodes, bloquant ainsi les pores qui permettent le transport de réactif, et affectant le taux de réaction. Par conséquent, il est nécessaire d'équilibrer ces deux phénomènes.

Les sources d'eau dans une cellule de combustible incluent la vapeur d'eau qui est transportée par les réactifs sur les côtés d'anode et de cathode, puisque les réactifs sont usuellement humidifiés pour assurer l'hydratation de la membrane. En outre, à la cathode, l'eau est produite dans la phase liquide pendant la réaction électrochimique, fournissant une autre source pour l'hydratation de membrane. L'excès d'eau à la cathode peut être rejeté vers les canaux de gaz grâce aux forces capillaires qui résultent de l'évaporation partielle de l'eau liquide dans les pores de la plaque de diffusion [19].

L'eau est en plus, transportée dans la membrane par convection due au gradient de pression entre les électrodes, par la diffusion due au gradient de concentration, et par la force de traînée électro-osmotique provoquée par la migration des protons. Une fois combinée ensemble, l'action de ces phénomènes peut avoir comme conséquence une distribution inégale de l'eau dans la membrane. Par exemple, aux densités de courant élevées, le côté d'anode peut se dessécher même si le côté de cathode demeure hydraté [18].

Le transport de l'eau est fonction du courant de cellules, de l'écoulement, de l'humidité des gaz d'admission, et des caractéristiques de membrane et électrodes [20].

3. 1.2.3 Utilisation efficace du catalyseur

Le coût du matériau du catalyseur est critique. Afin d'assurer la meilleure utilisation de la couche de catalyseur, les réactifs doivent être transportés avec un taux uniforme au siège de la réaction sur la surface des agglomérés de Téflon et de particules de platine (Figure 3.4). Le transport des réactifs se produit dans les pores séparant ces agglomérés, alors que le transport de protons se produit dans la phase du polymère. Le transport des réactifs devient un facteur limitateur si trop de résistance est offerte à la diffusion des espèces dans les pores. Ceci peut se produire aux densités de courant élevées, ou dans le cas du flooding dû à l'eau liquide excessive. Dans ces cas, la couche de catalyseur n'est pas utilisée dans sa totalité.

3. 1.2.4 Tolérance de CO

Si des hydrocarbures reformés sont employés comme carburant, suite à leur affinité pour le platine, la présence inévitable de quelques ppm du monoxyde de carbone CO (~10ppm) dans les gaz peut provoquer un empoisonnement des sites actifs au niveau des électrodes en bloquant l'accès à l'hydrogène, avec pour conséquence une chute remarquable du potentiel de la pile [21].

L'addition de l'équipement de purification de CO aux systèmes de reformage pour réaliser ce niveau bas de contamination augmente considérablement le coût du système PAC, sa taille et sa complexité, où l'épurateur de CO peut être plus grand que la pile elle-même.

3. 1.2.4 Gestion de la chaleur

La température peut affecter les propriétés des matériaux des composants de la cellule et, en conséquence, les performances de la pile. Il est important d'extraire la chaleur produite dans la cellule par le chauffage ohmique, le changement de phase partiel et la réaction électrochimique et d'assurer, ainsi, une température de cellules homogène.

En général, le facteur critique qui détermine la température maximale de fonctionnement de cellules est le matériau de membrane. Cette température est d'environ 80°C pour une PEMFC [18].

L'énergie libérée par la réaction électrochimique est dédoublée entre les composants électriques et thermiques et le taux de chaleur perdue peut être donné par [21]:

$$P_{perdue} = N_{cell} \cdot i \cdot A_{cell} \cdot (V_{oc} - V_{cell})$$

Dans laquelle :

P_{perdue} : Puissance calorifique totale perdue (W) ;

N_{cell} : Nombre de cellules en série dans la pile ;

i : Densité du courant (A/cm²) ;

A_{cell} : Surface électroactive (cm²) ;

V_{cell} : Tension de fonctionnement de la cellule (V) ;

V_{oc} : Tension théorique en circuit ouvert (V) ;

En supposant que toute la chaleur perdue soit extraite par le fluide réfrigérant, le débit requis pour un écart de température maximum du réfrigérant, peut s'écrire comme suit :

$$\dot{m}_{cool} = \frac{P_{perdue}}{C_p \cdot \Delta T} \quad (3.2)$$

Où :

\dot{m}_{cool} : Débit massique du fluide (kg/s) ;

C_p : Chaleur spécifique du fluide réfrigérant (J/kg.K) ;

ΔT : Ecart de température (K);

Notons ici que les systèmes réduits sont refroidis à l'air, tandis que les plus grands sont refroidis avec un liquide réfrigérant (eau déionisée + antigel), de chaleur spécifique plus élevée.

3.2 Systèmes basés sur des piles «PEMFC»

Nous décrivons ici l'ensemble des appareils nécessaires au bon fonctionnement d'une pile dans un environnement industriel. Ces auxiliaires étant fortement dépendant de l'application et de la localisation du système, ne nous intéresserons qu'à l'application de PEMFC embarquée, en particulier, à bord d'un véhicule automobile.

La pile PEM doit au minimum être connectée à six composantes représentées sur le schéma 3.9 :

- Une source d'hydrogène (qui peut être un hydrocarbure) ;
- Une source d'oxygène (classiquement l'air ambiant) ;
- Des évacuations des résidus ou des produits de la réaction ;
- Une source froide thermique (pour évacuer de la chaleur liée à la réaction et à l'effet Joule dans les électrolytes et les électrodes) ;
- Une charge électrique (groupe motopropulseur avec ou sans stockage d'énergie de type batterie ou super capacité) ;
- Une source d'eau pour l'humidification de la membrane.

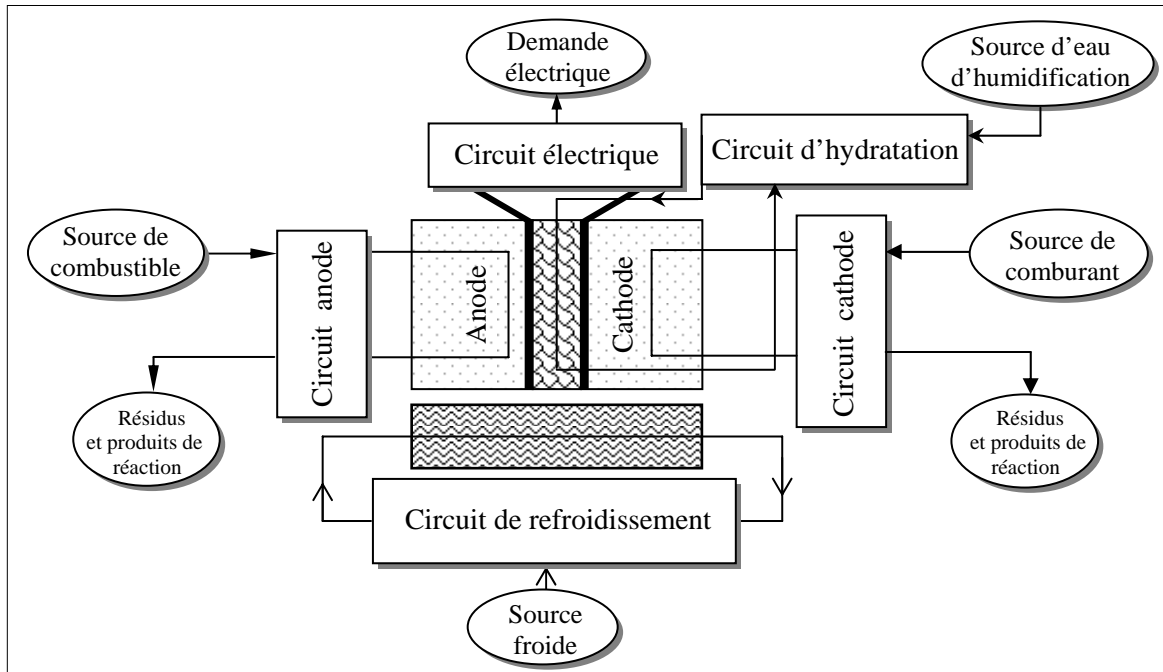


Figure 3.9 : Schéma fonctionnel d'un groupe électrogène à pile PEMFC, [1].

Ces connexions se font par l'intermédiaire de circuits spécifiques soit, au minimum, quatre circuits de fluides et un circuit électrique dont l'intégration dans le véhicule doit être optimisée. Enfin, il ne faudrait pas négliger l'ensemble des organes de régulation et de commande, garants du bon fonctionnement de l'installation, tant en terme d'efficacité que de sécurité.

3.2.1 En amont de la pile

Une pile à combustible, pendant les phases de production, doit être alimentée en continu par du combustible, la plupart du temps de l'hydrogène, et en comburant, le plus souvent de l'oxygène, présent à près de 21 % dans l'air ambiant.

L'approvisionnement en gaz peut être résolu par des solutions technologiques « classiques », mais pose un certain nombre de problèmes pour les applications embarquées.

3.2.1.1 Alimentation en combustible

Nous présenterons ici, les principales solutions retenues pour l'alimentation en hydrogène des piles (PEMFC), en différenciant les solutions avec reformage en ligne intégré et celles qui utilisent un stockage tampon.

Quelle que soit la solution envisagée (stockage embarqué ou reformage en ligne), il faudra donc transformer le combustible primaire en hydrogène, soit au niveau industriel que nous avons examiné en chapitre 1, soit dans le système même (Figure 3.10), à partir de combustible liquide (méthanol ou hydrocarbure conventionnel tel que l'essence et le diesel), avec possibilité d'emploi de «reformer à multi combustibles» comme celui évoqué dans la référence [3].

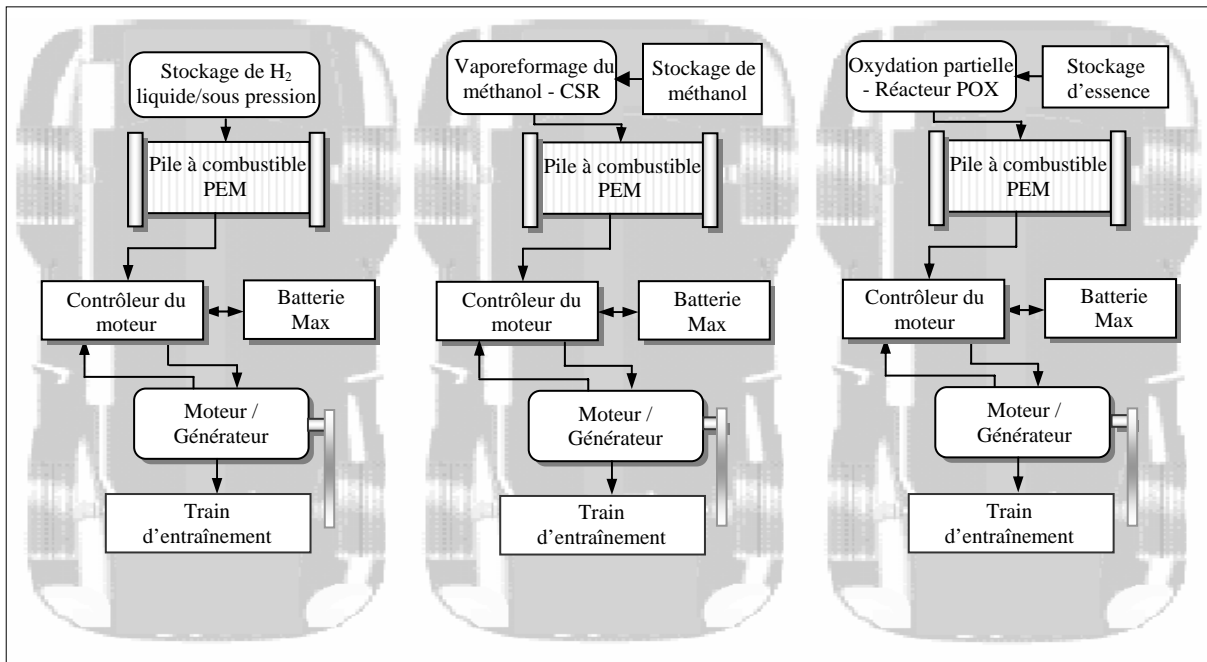


Figure 3. 10 : Configurations possibles d'alimentation en combustible à bord d'un VEH, [7].

Les différentes étapes de procédés chimiques donnant lieu à l'hydrogène à partir du méthanol et de l'essence sont respectivement illustrées dans les figures (1.2) et (1.3) du premier chapitre. Nous listons ci dessous les atouts et défauts de trois combustibles alimentant la PEMFC dont la comparaison des infrastructures est discutée en détail dans la référence [7].

Tableau 3. 1 : Avantages et inconvénients des différents combustibles pour pile PEM.

Combustible	HYDROGENE	METHANOL	ESSENCE / DIESEL
Infrastructure	Peu disponible	Disponible	Très disponible
Densité d'énergie	Très faible	Grande	Très grande
Toxicité	Nulle	Moyenne	Grande
Simplicité du système	Très simple	Complicé	Complicé
Efficacité	Très élevée	Elevée	Moyenne

Le schéma 3.11 montre les différentes étapes que doit parcourir l'hydrogène comprimé à 250 bars avant de rejoindre le compartiment anodique de la pile PEM équipant le véhicule hybride (FC-HEV) de Virginia Tech. Ainsi il doit d'abord être détendu jusqu'à une pression inférieure (0,7 bars), ensuite humidifié, pour être enfin séparé d'eau excessive.

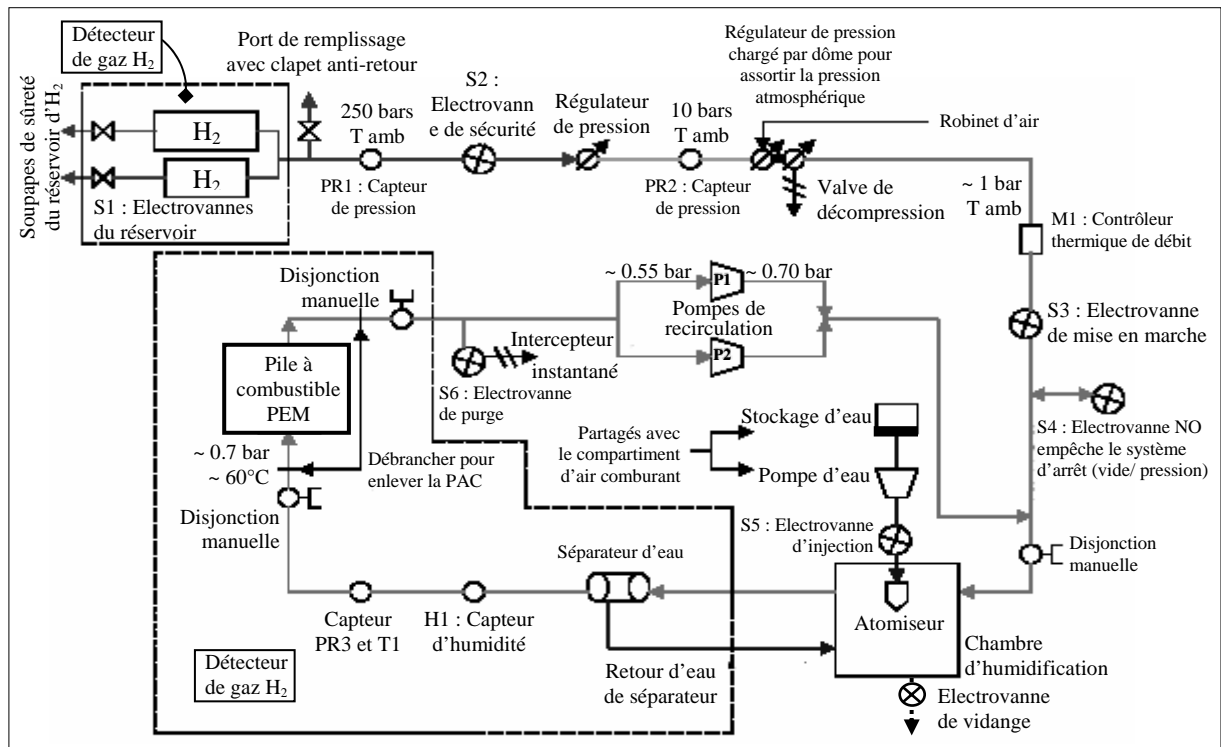


Figure 3.11 : Système de stockage et d'alimentation en hydrogène pour une PEMFC, [23].

3.2.1.2 Alimentation en comburant

Dans la plupart des installations embarquées, le comburant qui alimente la pile est l'oxygène pris dans l'air ambiant. L'air est, pour toutes les applications terrestres, disponible, abondant, et « gratuit ». Cependant, il présente quand même au moins deux inconvénients :

- ▶ Il est à pression atmosphérique, et la compression d'air peut coûter entre 10 et 30 % de la puissance fournie, suivant que l'on travaille à 1,5 ou 4 bars [8];
- ▶ Il est souvent pollué par divers composés chimiques néfastes à la bonne tenue de certains composants de la pile PEM.

C'est pourquoi il faut, que l'air à l'admission de la PEMFC soit comburant, propre exempt de polluants, à la bonne température, saturé en humidité et éventuellement sous pression pour assurer une meilleure efficacité volumique, tout en maintenant un différentiel de pression constant entre les deux compartiments pour éviter une déchirure de la membrane.

Le tableau 3.2 synthétise les issues et les contraintes techniques rencontrées lors de la mise au point d'un sous-système fiable d'alimentation en comburant.

Tableau 3. 2 : Contraintes liées à l'alimentation en comburant d'une PEMFC.

EXIGENCE :	SOLUTION :	CONTRAINTES :
Air propre.	Filtres.	Matériel lourd, volumineux, cher, générateur de pertes de charges et température limitée.
Suralimentation en oxygène.	Système de compression.	Matériel lourd, volumineux, coût énergétique de compression élevé, nécessitant un système de commande et de régulation.
Température d'air d'entrée optimale.	Echangeurs.	Matériel lourd, volumineux, nécessitant un système de régulation & commande.
Humidité suffisante à l'entrée de la pile.	Humidificateur.	Matériel supplémentaire, besoin d'une source d'énergie pour chaleur de vaporisation.

Nous montrons ci-après le dispositif d'air d'alimentation du véhicule hybride (FC-HEV) de Virginia Tech avec ses différentes unités hydrauliques et électriques :

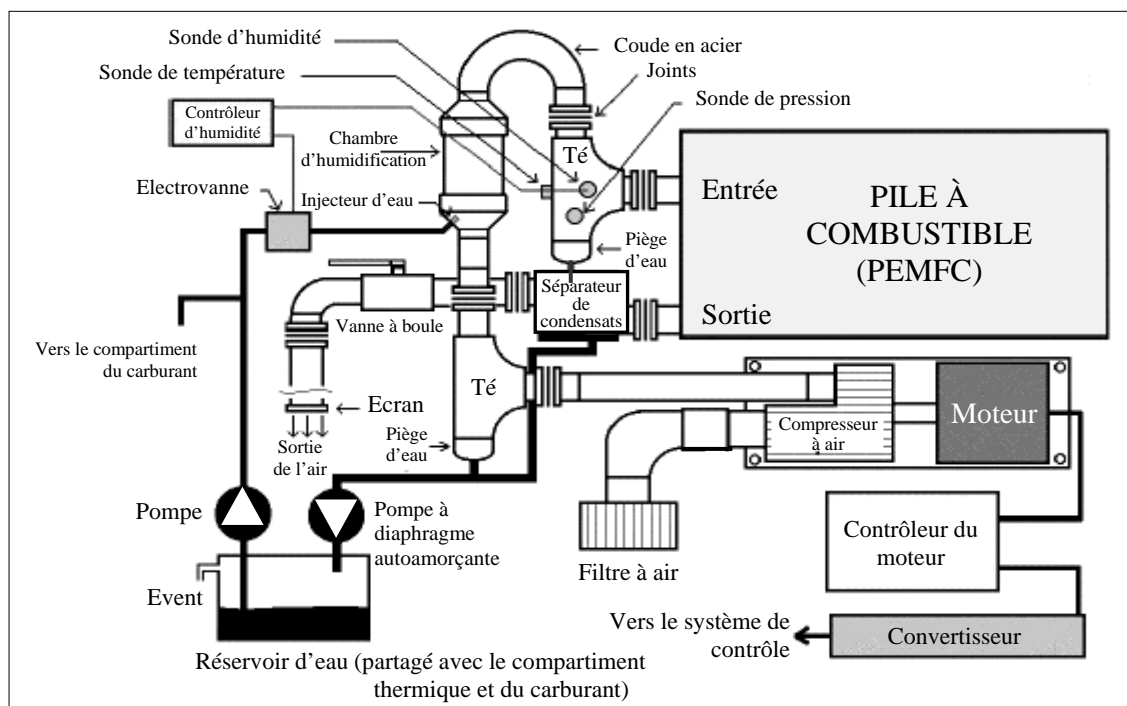


Figure 3. 12 : Schéma du sous système d'air d'alimentation [23].

Enfin, les membranes des PEMFC doivent être humidifiées en permanence au risque de se rompre en cas de dessèchement ; ce qui impose le passage des gaz réactifs par des humidificateurs comme présentés dans les figures (3.11) et (3.12).

3.2.2 En aval de la pile

Après avoir traversé les compartiments cathodique et anodique, les gaz d'échappement doivent être traités, notamment pour :

- Éliminer l'eau liquide produite par la réaction avant rejet à l'atmosphère ;
- Éviter de rejeter à l'atmosphère l'hydrogène résiduel ;
- Valoriser l'énergie résiduelle contenue dans les fluides.

De plus, la pile produit de l'électricité, qu'il faudra envoyer sur une charge, après passage éventuel au travers d'un onduleur ou d'un transformateur dont la réaction exothermique, nécessite un circuit de refroidissement.

3.2.2.1 L'hydrogène en sortie du compartiment anodique

Deux principaux modes de gestion sont envisageables pour la sortie du compartiment anodique [8] :

- La sortie est bouchée ;
- La sortie est ouverte.

Dans le premier cas, tout l'hydrogène est consommé et chaque cellule court le risque de se remplir au fil du temps, soit des autres gaz présents dans le circuit de combustible, soit de gaz inertes par diffusion au travers de l'électrolyte, tels que l'azote et l'argon contenus dans la chambre cathodique.

Cette solution n'est donc applicable que si l'hydrogène est très pur (issu d'un stockage), et sous réserve que l'électrolyte ne soit pas trop perméable aux éléments présents dans le compartiment cathodique (eau, azote).

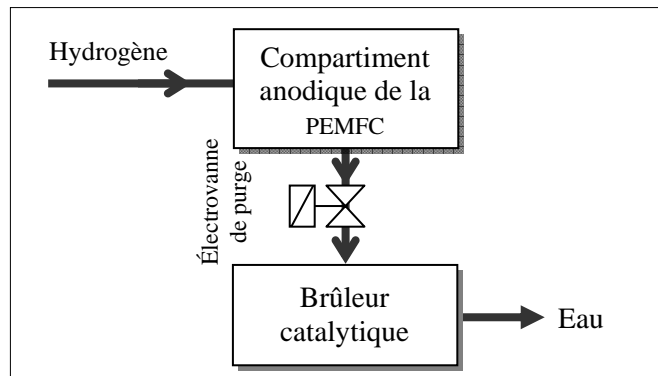


Figure 3. 13 : Schéma de principe de purge d'hydrogène.

Dans ces conditions, il est quand même nécessaire de purger, de temps en temps, le compartiment anodique pour évacuer les gaz inertes qui s'y sont accumulés. Cette purge entraîne nécessairement une légère quantité d'hydrogène, qu'il faut brûler dans un brûleur catalytique prévu à cet effet, (Figure 3.13).

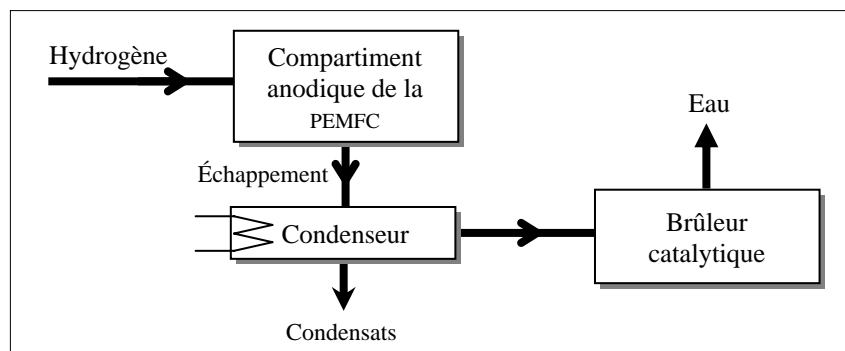


Figure 3. 14 : Schéma de principe de l'échappement d'hydrogène [8].

Quand la sortie de la chambre anodique est ouverte, alors en fonction de la stoechiométrie de l'alimentation, deux procédés sont encore envisageables :

Si elle est proche de l'unité, nous pouvons estimer que presque tout l'hydrogène est consommé, et la partie imbrûlée peut être évacuée, après séparation éventuelle de l'eau qu'elle contient (via un condenseur), vers un brûleur catalytique avec le même schéma 3.14.

Si l'alimentation en hydrogène est telle que de grandes quantités ne réagissent pas lors du passage dans la pile, alors, la solution la plus efficace est de réinjecter, après un traitement éventuel, le gaz d'échappement en amont de la pile (option 1), au moyen d'une boucle de recirculation, ou de le brûler pour apporter de l'énergie à un éventuel reformeur (option 2).

La conception du système est donc un peu plus complexe, mais l'efficacité énergétique doit être meilleure.

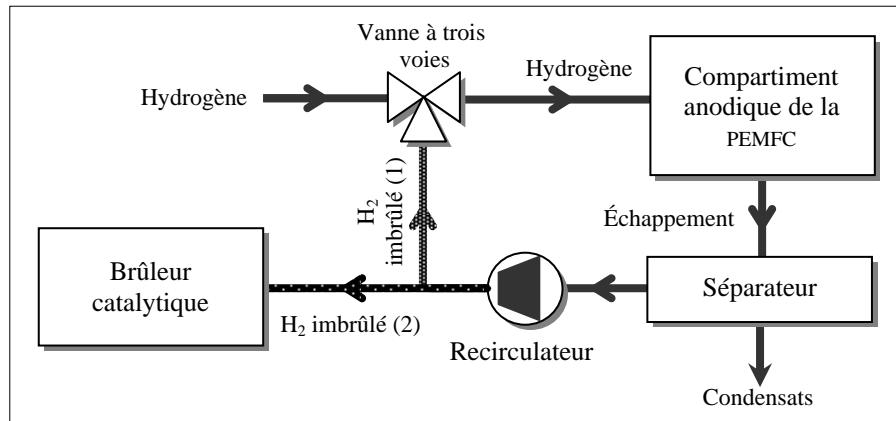


Figure 3. 15 : Schéma de principe de la récupération d'hydrogène imbrûlé [8].

3. 2.2.2 L'air en sortie du compartiment cathodique

Après passage dans le compartiment cathodique, l'air appauvri en oxygène est saturé d'humidité. Notamment de l'eau en phase liquide est présente, si la température de fonctionnement le permet.

Nous pourrions nous contenter de rejeter l'air à l'atmosphère, mais il est souvent utile d'exploiter, éventuellement :

- La pression résiduelle ;
- L'énergie calorifique (chaleur sensible et/ou latente) ;
- L'eau à température de pile (vapeur ou liquide).

La plupart des installations prévoient une séparation de l'eau en sortie de pile par condensation. L'eau peut servir à humidifier les gaz en amont de la pile, et peut être utilisée dans une section de reformage. Il faudra cependant toujours se rappeler que la pile produit plus d'eau qu'elle n'en consomme, et prévoir de pouvoir l'évacuer à tout moment (par purge), [8].

Le schéma de la source d'énergie électrochimique du véhicule NECAR 3 de Daimler Chrysler illustre quelques systèmes de récupérations sur les produits en sortie du compartiment cathodique.

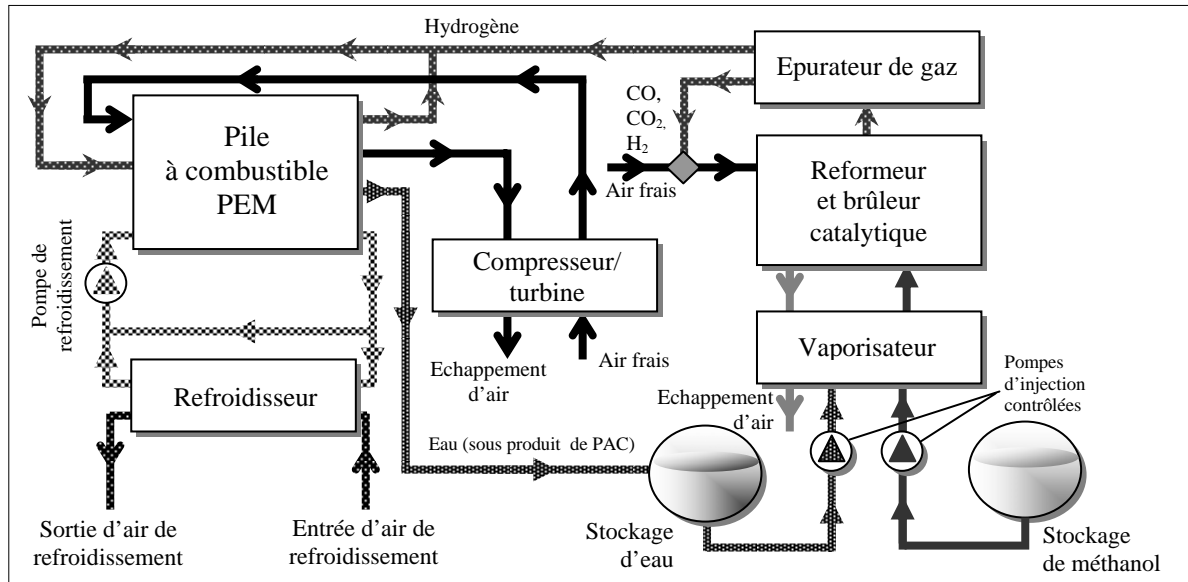


Figure 3. 16 : Le système Daimler Chrysler de pile à combustible alimentée au méthanol [1].

Dans le cas du fonctionnement sous pression, avec une forte stoechiométrie, nous disposons d'un débit de gaz important, dont nous pouvons récupérer une partie de l'énergie de pression dans une turbine avant rejet à l'atmosphère. Cette turbine, si son arbre est éventuellement relié à un compresseur, peut d'ailleurs participer à l'énergie mécanique de compression, en en diminuant ainsi le coût, et en augmentant le rendement énergétique du système global. Quant à l'enthalpie de chaleur sensible contenue en sortie de pile, il est toujours possible de s'en servir au travers d'un échangeur.

3. 2.3 Gestion de l'électricité produite

Une pile à combustible est dimensionnée pour fournir, en régime nominal, une intensité I sous une tension continue V .

La plupart des moteurs équipant les chaînes de traction électrique, ne supportent qu'un courant alternatif de fréquence et de tension très précises. Il faudra donc envoyer la production électrique de la pile dans un onduleur, après en avoir ajusté la tension dans un convertisseur continu–continu (DC-DC).

De tels appareils très courants, très performants, avec des rendements énergétiques proches de l'unité (entre 90 et 95 %) [14, 15, 22], leurs spécifications techniques sont décrites dans les références [13, 15].

Il arrive aussi que, le véhicule ne consomme pas toute la puissance disponible. Il est, dans ce cas, possible de diminuer la production de la pile, mais aussi d'en stocker une partie dans un système d'accumulation composé de batteries secondaires ou de système à super condensateurs (ultra-capacitors) comme celui installé dans le trolleybus à PEMFC « CRITALIS », (Figure 3.17). La technologie du volant C.C (Flywheel Motor Generator) constitue une alternative fiable de stockage d'énergie dans les batteries électromagnétiques.

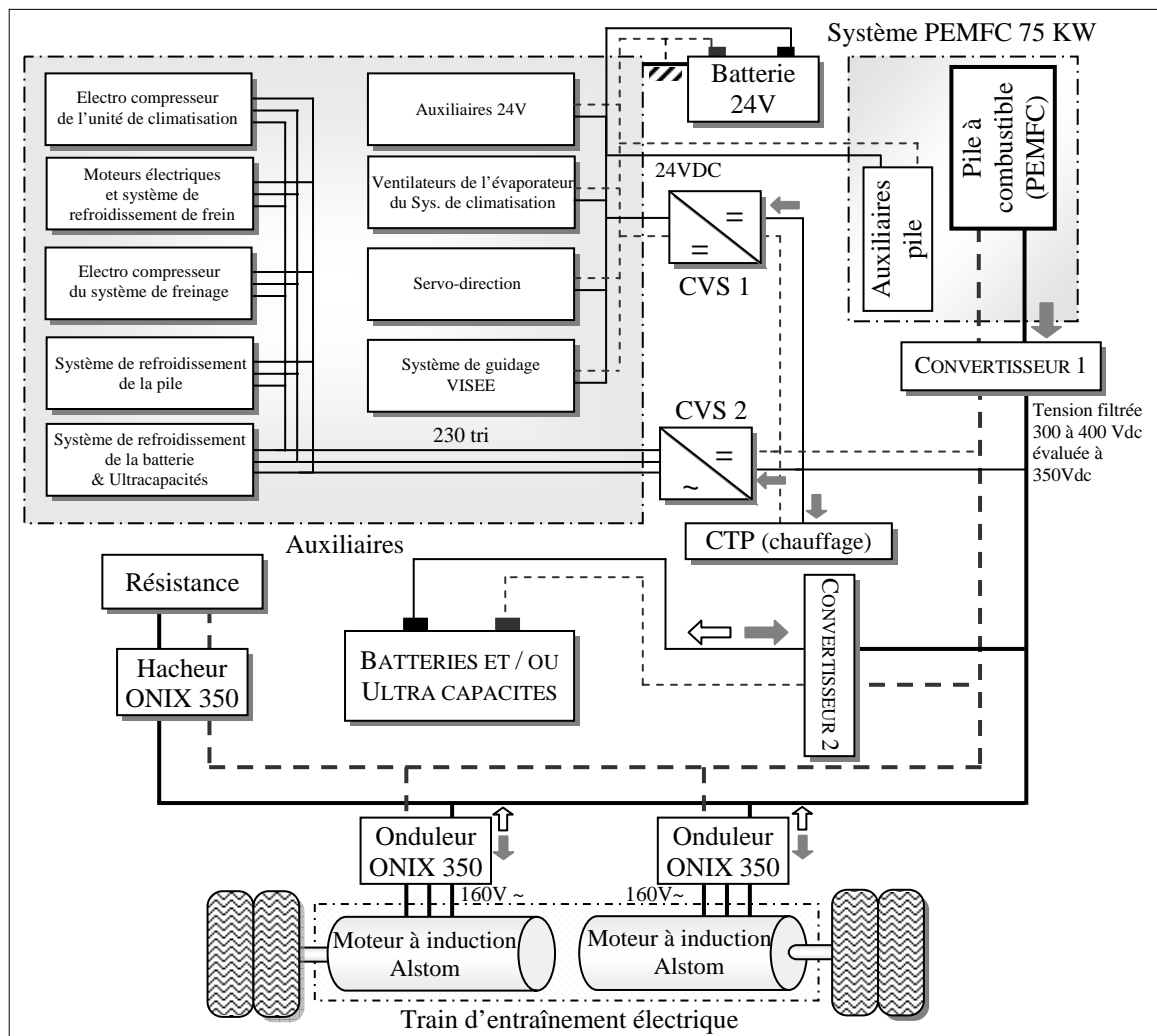


Figure 3. 17 : Architecture électrique du trolleybus CRITALIS à PEMFC [13].

3.2.4 Gestion de la chaleur produite

La réaction électrochimique permettant la génération d'électricité est exothermique. Pour les piles fonctionnant à basse température, un système de refroidissement est nécessaire pour maintenir l'ensemble du réacteur à la température voulue.

Suivant les conditions de fonctionnement, la puissance à dissiper peut être du même ordre de grandeur que la puissance électrique produite, ce qui est bénéfique quand nous disposons d'un puits de chaleur utile, mais pose parfois problème dans un véhicule de taille réduite, particulièrement pendant l'été.

L'énergie ainsi évacuée (la plupart du temps par de l'eau liquide ou surchauffée) peut être récupérée au moyen d'échangeurs vers une boucle primaire, elle-même échangeant avec une boucle secondaire qui amène les calories vers l'utilisation (système de chauffage, réseau de chaleur...), ou qui l'évacue vers l'atmosphère, quand la demande en chaleur est inférieure à la production. Dans ce cas, il est souvent installé un module spécifique de refroidissement avec un écoulement suffisant de liquide réfrigérant, généralement de l'eau déionisée employée avec un échangeur de chaleur.

La figure 3.18 montre le schéma de principe du sous-système de refroidissement du PEMFC à bord du véhicule hybride (FC-HEV) de Virginia Tech.

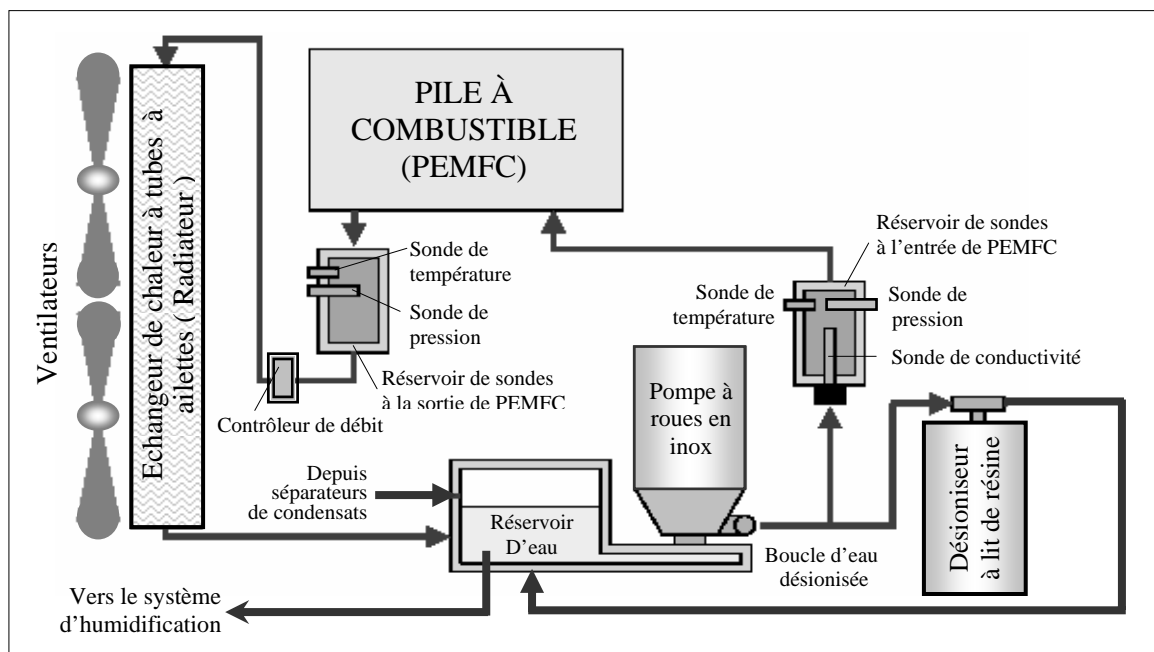


Figure 3. 18 : Système de refroidissement de la pile PEMFC [23].

3. 2.5 Générateurs auxiliaires

En régime de fonctionnement nominal, les systèmes basés sur l'utilisation de piles à combustibles sont toujours autosuffisants pour leur propre consommation en électricité.

Ce n'est pas le cas lors des phases de démarrage qui nécessitent l'emploi de générateurs auxiliaires (réseau ou batterie, chaudières ou résistances...) parfaitement utiles pour prendre le relais en cas de défaillance de la production électrique de la pile, ne serait ce que pour permettre de gérer la mise en condition de sécurité de l'ensemble.

3. 2.5.1 Générateurs de chaleur auxiliaires

Dans le cadre de conception de systèmes embarqués sur véhicules, des brûleurs auxiliaires sont prévus pour permettre la montée en température des appareils « chauds » [8], notamment du reformeur, ainsi que la fourniture initiale de vapeur pour le vaporeformage ; tandis que dans l'installation reliée au gaz naturel, ces brûleurs sont alimentés par le réseau.

3. 2.5.2 Générateurs d'électricité auxiliaires

Ils sont indispensables, quelle que soit l'installation, même reliée au réseau d'électricité. Sous forme de batteries électrochimiques, ils doivent être dimensionnés pour permettre :

- D'assurer l'ensemble de la phase de démarrage d'une installation embarquée (ou non reliée au réseau électrique) ;
- D'assurer la fourniture d'électricité aux systèmes de régulation–commande en cas de défaillance de la ou des sources principales.

Ils sont ensuite rechargés soit par la pile en fonctionnement, soit par le réseau. Dans le cas de systèmes embarqués, on peut aussi les utiliser en cas de pointes de demande (phases d'accélération...), ainsi que pour récupérer de l'énergie lors des phases de décélération.

3. 2.6 Régulation et commande du système et de la pile

Les systèmes basés sur l'utilisation de piles à combustibles sont assez complexes et de maniement assez délicat pour que leur conception intègre une partie spécifique sur les organes de régulation et de commande.

En ce qui concerne le système global, avec des appareils sous pression contenant des réactifs, des précautions classiques sont nécessaires, tant dans les phases transitoires que dans les phases de fonctionnement en régime permanent. De plus, pour les arrêts de longue durée, des actions spécifiques sont souvent à prévoir, pour vidanger correctement l'ensemble des circuits, et éventuellement rendre inertes les compartiments contenant du combustible.

La pile elle même nécessite une surveillance particulière, quant à son fonctionnement, pour déceler à temps toute anomalie de production, par exemple sa protection contre les appels de courant trop importants.

Les différentes phases de fonctionnement du système embarqué sur véhicule, doivent être commandées et observées par des régulations spécifiques. Enfin, une partie de l'installation contenant de l'hydrogène, celle ci doit s'accorder avec l'ensemble des réglementations en vigueur.

3. 2.6.1 Phases transitoires

3. 2.6.1.1 Démarrage du système

Le démarrage d'une installation doit suivre un organigramme d'actions et de contrôles très précis permettant de configurer le système complet, dans les meilleurs délais et conditions opératoires.

Avec une pile PEMFC travaillant à température ambiante à partir d'un réservoir d'hydrogène, cette phase peut être très rapide (de l'ordre de quelques secondes), mais dure quelques minutes pour une installation de cogénération intégrant un système de reformage.

La première des actions (la clé de contact) met en route les systèmes d'acquisition de données sur batteries, ainsi que les appareils de commande. Une série de mesures est alors effectuée pour vérifier l'aptitude du système au démarrage (atmosphère neutre dans les parties liées au combustible ...).

Ensuite, un certain nombre d'actions lancées sous contrôle d'un automate superviseur, permettront la bonne montée en pression et en température de l'ensemble des circuits, ainsi que dans la pile elle-même. L'organigramme de l'ensemble de cette opération fait souvent plusieurs dizaines de pages [8].

La fin de cette phase de démarrage est atteinte quand la pile est capable de fournir assez d'électricité et de chaleur pour son propre fonctionnement, position souvent appelée : « Stand by ». Nous pouvons alors, après vérifications ultimes, passer en phase de production « utile ».

3.2.6.1.2 Séquences d'arrêt

Il peut exister deux types d'arrêt :

- L'arrêt volontaire (véhicule au garage, arrêt du système pour maintenance...).
- L'arrêt d'urgence.

Lors des phases d'arrêt volontaire, il faut que l'installation entière soit mise en configuration de sécurité, pour qu'elle puisse passer la période d'inactivité sans préjudice. Il faut notamment consommer le combustible restant présent dans l'installation (en rechargeant les batteries, par exemple).

Pour les installations avec stockage d'hydrogène, celui-ci doit rester confiné dans son réservoir, car sous forme liquide et pour des arrêts de longue durée (plusieurs jours); il peut poser problème. En effet, les pertes thermiques du réservoir, même très faibles, évaporent une partie du combustible jusqu'à la pression d'ouverture des événements (soupapes). La solution est alors de faire passer le gaz évacué par un brûleur catalytique produisant de la vapeur d'eau.

Pour les arrêts d'urgence, liées à la défaillance d'un des organes du système, les procédures doivent permettre de conserver à tout moment les conditions de sécurité. Une fois celles-ci atteintes, il est souvent nécessaire de piloter « manuellement » la remise en conditions normales de l'installation.

3.2.6.1.3 Variations de charge

Il est, pour de très nombreuses raisons, économiques et technologiques, préférable de maintenir un régime de fonctionnement permanent et nominal. Cependant, il peut être utile de pouvoir faire varier la production de la pile parce que le véhicule n'a pas besoin de toute la puissance disponible.

Il faudra donc prévoir un système automatique d'adéquation de la production à la charge, qui jouera sur les débits d'arrivée des combustibles, éventuellement sur les pressions, ou qui contrôle et gère l'état de charge, « SOC » (State Of Charge), du système de stockage (batteries ou super condensateurs) des véhicules électriques hybrides.

3.2.6.2 Fonctionnement en régime permanent

C'est de loin le fonctionnement le plus simple, et qui dure le plus longtemps.

Des automates de régulation sont alors actifs, contrôlent un certain nombre de variables, et peuvent automatiquement ajuster certains actionneurs pour maintenir l'état nominal de l'installation. C'est notamment le cas pour les organes de surveillance spécifiques à certaines piles à combustibles. En plus, ils vérifient un certain nombre de paramètres caractéristiques du fonctionnement de la pile, pour anticiper un dysfonctionnement à venir, pouvant entraîner, à termes, une menace sur la bonne tenue et la sécurité du système.

Les caractéristiques électriques de sa production (tension, courant), sa température, la pression des fluides en amont ou en aval peuvent être de bons indicateurs de l'état de la pile. Par exemple, dans le cas des PEMFC, la baisse de tension au niveau d'une cellule peut indiquer un début de remplissage d'eau, qui nécessite une purge rapide, pour permettre de retrouver les conditions nominales [8].

Ainsi, l'ensemble des organes auxiliaires, de commande et d'acquisition de données peut prendre une importance considérable dans le bon fonctionnement et la sécurité du système et sera donc une part non négligeable de l'investissement, tant en matériel qu'en études de conception et de validation.

En guise de conclusion à ce chapitre, la pile à électrolyte polymère solide (PEMFC) disposant de sa propre réserve de combustible peut être considérée comme un générateur d'électricité portable et autonome et de ce fait, envisagée comme une candidate alternative aux moteurs thermiques dans la majorité des modes de transports terrestres. Néanmoins, pour pouvoir fonctionner correctement, elle doit être le cœur d'une installation technologique spécifique, dont les éléments sont pour la plupart classiques, mais de conception globale nécessitant un soin particulier.

Dans le prochain chapitre, nous focaliserons l'étude sur la modélisation mathématique de la pile (PEMFC), s'avérant indispensable pour une meilleure assimilation des paramètres agissant sur ses performances et celles de ses auxiliaires suscités

CHAPITRE 4

MODELISATION ET PERFORMANCES D'UNE PILE « PEMFC »

Dans cette partie de synthèse, nous allons d'abord étudier l'état de l'art des différents modèles de (PEMFC) rapportés en publications, et ceux disponibles commercialement avec leurs principaux critères de sélection.

En second lieu, développer, après une étude thermodynamique détaillée, un modèle mathématique capable de générer la courbe de polarisation caractéristique d'une pile à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC) en fonction des propriétés liées aux gaz réactifs (stoechiométries, pressions partielles, température,...), et à l'ensemble membrane électrodes (taux d'hydratation, épaisseur, résistance ohmique ...).

4. 1 Modèles d'évaluation des systèmes de pile « PEMFC »

4. 1.1 Introduction

La modélisation mathématique joue un rôle primordial dans le développement et l'analyse des piles à combustible, puisqu'elle facilite une meilleure compréhension des paramètres affectant l'exécution des cellules aussi bien que la gestion de la chaleur et de l'eau. A l'aide de cet outil utile, la simulation des performances à diverses conditions de fonctionnement (température, humidité, compositions des gaz...) du système global de pile peut s'effectuer et les résultats des essais peuvent être employés à la recherche d'une conception (PEMFC) optimale, en impliquant des matériaux multiples et minimisant de ce fait, le temps nécessaire pour de nombreuses études expérimentales.

Un grand nombre de modèles mathématiques de piles à combustible (PEMFC) ont été récemment édités, et certains sont disponibles commercialement, mais la plus part de ces modèles courants n'est développée que pour aborder uniquement les issues de mise en œuvre de la pile et, aucun d'eux ne la considère dans l'ensemble, afin de traiter simultanément tous ses phénomènes (cinétique électrochimique, transport de masse,...). En outre, les données expérimentales et modèles trouvés dans la littérature ne sont valides que pour des hypothèses spécifiques et conditions idéalisées qui semblent souvent, peu réalistes [19].

Néanmoins, certaines des contributions les plus pertinentes à la modélisation mathématique d'une PEMFC sont présentées dans le tableau suivant :

	MODELE	REGIME	LIMITE DU SYSTEME	PHENOMENE ETUDIE
APPROCHE THEORIQUE	Springer et al.	Stationnaire	Cellule élémentaire	Transport de l'eau
	Bernardi & Verbrugge	Stationnaire	Couche du catalyseur	Polarisation de cellule, transport de l'eau et utilisation du catalyseur
	Fuller & Newman	Stationnaire	Cellule élémentaire	Gestion de la chaleur et de l'eau et utilisation du combustible.
	Nguyen & White	Stationnaire	Canal de gaz	Gestion de la chaleur et de l'eau.
	Yi & Nguyen	Stationnaire	Cellule élémentaire	Gestion de la chaleur et de l'eau, transport d'espèces
	Dannenberg et al.	Stationnaire	Cellule le long du canal	Gestion de la chaleur et de l'eau
	You & Liu	Stationnaire	Couche de catalyseur de la cathode	Transport et écoulement au niveau des canaux de gaz et les plaques de diffusions
	Boettner et al.	Stationnaire	Système pile à combustible	Performances et stratégies de commande du système et de ses composants
APPROCHE SEMI EMPIRIQUE	Kim et al.	Stationnaire	Cellule élémentaire	Equation empirique de polarisation de la cellule.
	Amphlett et al.	Transitoire	Pile à combustible	Gestion de la chaleur
	Mann et al.	Stationnaire	Cellule élémentaire	Modèle générique.

4. 1.2 Critères de sélection des modèles mathématiques

Pour faire le meilleur choix du modèle de pile à combustible, il est important de clarifier ce que sont les dispositifs clés du modèle désiré et d'énoncer précisément l'objectif de simulation de sorte que, les issues liées aux ressources d'organisation en termes de personnel, coût et temps, puissent être prises en considération et, les contraintes techniques concernant le niveau de détails exigé, les solutions à adresser par la simulation et le degré de connaissance de l'utilisateur, doivent être comprises.

Si l'objectif de simulation est de fournir un outil de recherche pour l'éducation ou les études approfondies, l'élaboration et la validation d'un modèle local est très utile pour acquérir les concepts. Cependant, le procédé de développement de modèles tend à devenir lent et onéreux. D'où, pour de petits projets ou applications de ressources réduites, le logiciel commercial de pile à combustible fiable et validé, peut être une solution appropriée.

Ainsi, le choix optimal du modèle diffère pour chaque application et utilisateur, et les décisions initiales sont importantes pour éviter plus tard les changements coûteux du processus d'évaluation du modèle. Une fois les critères initiaux sont fixés, des détails tels que le contenu et la structure du modèle devraient être considérés. Nous récapitulons ci-après les principaux critères pour l'évaluation d'un modèle de pile à combustible :

- Approche modèle (théorique, semi empirique) ;
- État (permanent, transitoire) ;
- Frontière du système (cellule de pile, pile à combustible, système de PAC) ;
- Dimensions spatiales (de la dimension zéro à trois) ;
- Rapports dynamiques de complexité/détails (électrochimique, thermodynamique,...)
- Pas de temps (fixée, variable, temps réel) ;
- Vitesse et flexibilité ;
- Exactitude et validation ;
- Code source (ouvert, de propriété industrielle) ;
- Représentation graphique de modèle ;
- Bibliothèque des modèles, des composants, et des propriétés thermodynamiques ;
- Documentation.

4. 1.3 Examen des modèles de piles à combustible «PEMFC»

Pendant les dix dernières années, plusieurs modèles de PAC, de la simple zéro dimension aux modèles tridimensionnels complexes, ont été décrits dans la littérature ouverte. Beaucoup d'universités, de laboratoires nationaux, et de compagnies ont développé leurs propres modèles de pile à combustible ; tous avec de différentes approches de modélisation et de niveaux de détail distincts, (Figure 4.1).

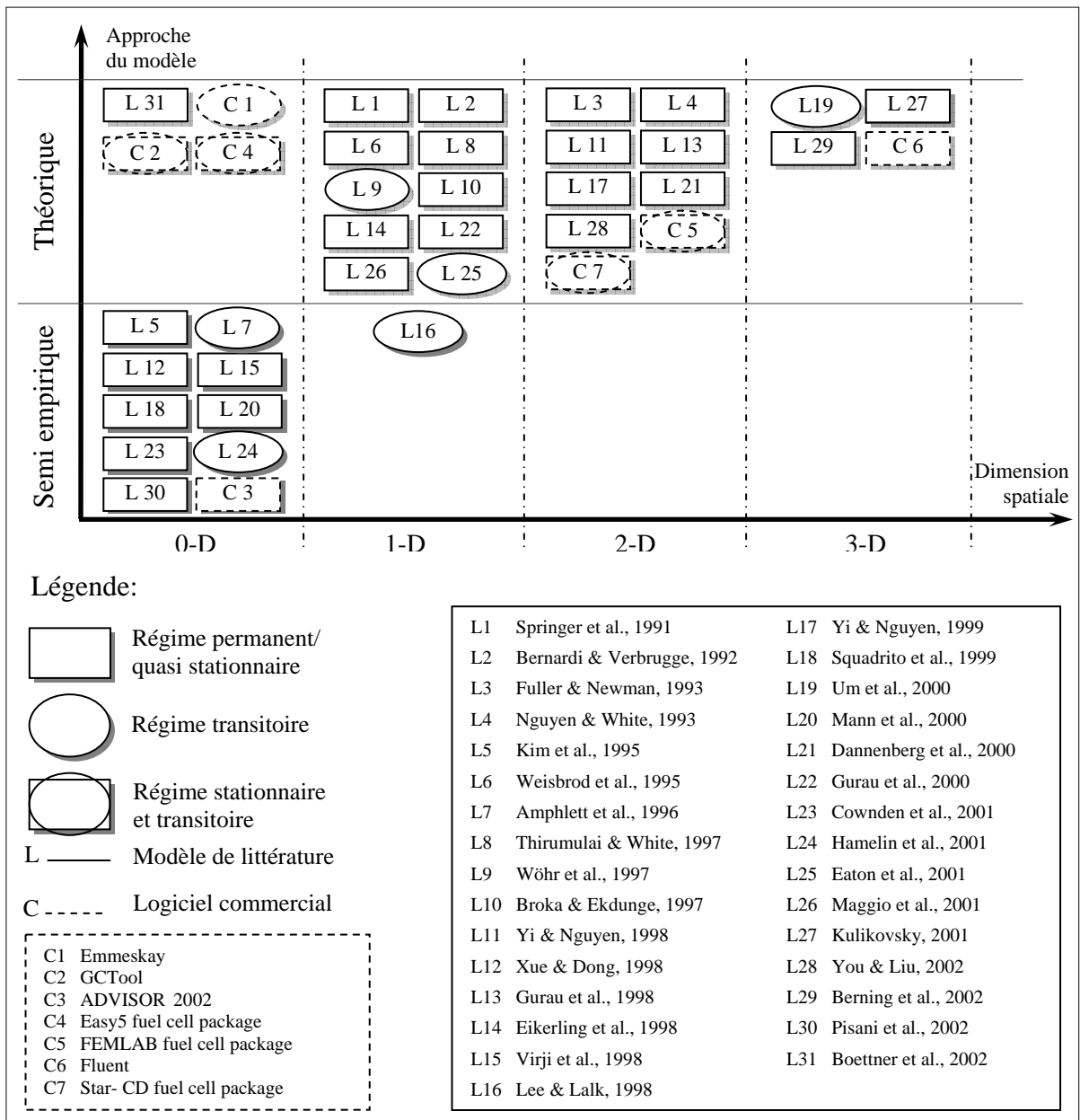


Figure 4. 1 : Vue d'ensemble systématique des modèles de piles PEMFC disponibles en littérature et commercialement [24].

4. 1.3.1 Modèles de piles PEMFC dans la littérature

Selon les besoins du chercheur, un modèle de « système » ou un modèle « mécaniste » peut être employé afin d'étudier une issue de développement de la technologie PEMFC et pour lesquels, il recourt à une approche théorique complexe détaillée et/ou une approche semi empirique basée sur des données expérimentales [15, 24].

4. 1.3.1.1 Modèles de système

Les modèles de systèmes sont en général de nature macroscopiques et emploient des paramètres de conception de base et des conditions de fonctionnement pour calculer les performances globales.

Ces modèles résolvent les bilans énergétiques et de masse aux différentes températures, pressions, compositions en carburant, et autres consignes de conception à partir desquels, tension, puissance, et surfaces totales peuvent être calculés [15]. Cette information est employée pour optimiser les caractéristiques d'exécution telles que le rendement thermique ou le coût.

4. 1.3.1.2 Modèles mécanistes

Les modèles mécanistes sont formulés pour étudier les détails minutieux de l'opération de pile à combustible pour aborder les solutions particulières de sa conception. Ils sont basés sur des corrélations thermodynamiques, électrochimiques, et parfois, dynamiques, en utilisant des équations phénoménologiques de base telles que l'équation de NERNST - PLANCK pour le transport d'espèce, l'équation de STEFAN - MAXWELL pour le transport en phase gazeuse, et l'équation de BUTLER - VOLMER pour la tension de cellule. Ces issues de conception peuvent inclure les transitions thermiques pendant la mise en marche ou l'arrêt du système, le transport de masse par l'électrolyte et les électrodes, ou les effets de la géométrie de cellules.

Les modèles mécanistes sont beaucoup plus complexes que les modèles de système, car exigeant des dimensions et des propriétés physiques de cellule additionnelles, et mènent généralement à la résolution de systèmes d'équations aux dérivées partielles.

Selon l'intérêt, ce modèle peut fournir des détails tels que la distribution de densité de courant, la tension, les chutes de pression dans la pile à combustible, ainsi que le modèle d'écoulement en tout point dans sa cellule élémentaire.

4. 1.3.2 Logiciels commerciaux de piles à combustible « PEMFC »

L'établissement et la validation des modèles de littérature peuvent prendre beaucoup de temps, faisant des logiciels sophistiqués une option attrayante quand la période est limitée. Un tel outil permet la construction d'un modèle client adapté, car il peut inclure des modèles de pile prêts à l'emploi (système ou mécaniste) avec un potentiel de modifications définies par l'utilisateur et une bibliothèque de divers constituants de cellules et sous-systèmes, ainsi qu'une banque de données contenant les propriétés physicochimiques des différents composants utilisés pour le calcul des propriétés thermodynamiques, y compris l'équilibre chimique et de phase. Le tableau 4.2 regroupe quelques logiciels commerciaux de piles PEMFC:

Tableau 4. 2 : Sélection de logiciels actuels de piles PEMFC [24], (+ : Oui, - : Non).

MODELE	EMMESKAY	ADVISOR 2002	GCTOOL	EASY5	FEMLAB
Origine	Emmeskay	NREL	ANL	Ricardo	COMSOL
Dimension	0	0	0	0	2
Etat :					
• Transitoire	+	-	+	+	+
• Permanent	-	+	+	+	+
Limite du système :					
▶ Cellule	-	+	-	-	+
▶ Pile	+	-	-	+	-
▶ Système PAC	-	+	+	+	-
Approche :					
▪ Théorique	+	-	-	+	+
▪ Semi empirique	-	+	+	-	-
Option de pas de temps fixe et variable	+	+	-	+	Non disponible
Complexité :					
• Cellule/pile	Moyenne	Basse	Moy. /élevée	Moyenne	Elevée
• Système PAC	N/D	Moyenne	Moy. /élevée	Moy. /élevée	Non dispo.
Représentation graphique	+	+	-	+	+
Bibliothèque	-	+	+	+	+
Documentation	-	+	+	+	+

Quelques modèles commerciaux de piles PEMFC et modules additionnels de logiciel sont disponibles : Emmeskay, ADVISOR (Advanced Vehicle Simulator) du Laboratoire National d'Energie Renouvelable (NREL), GCTool (General Computational Toolkit) du Laboratoire National d'Argonne (ANL), les modules de PACs dans 5 Easy de Ricardo, et FEMLAB de COMSOL [24].

De nombreux modèles commerciaux sont développés, particulièrement les modèles multidimensionnels mécanistes. Par exemple : le modèle tridimensionnel (CFD) (Computational Fluid Dynamics) élaboré au Laboratoire National de Technologie d'Energie (NETL) avec le groupe FLUENT [15], quant à Ansoft Corporation et Synopsys leur modèle de système PEM verra le jour dans un proche avenir [24].

4.2 Modélisation d'une cellule « PEM » élémentaire

Le but de cette section est d'établir un modèle mathématique susceptible de tracer la courbe de polarisation caractéristique d'une cellule unitaire de pile PEMFC, ce qui nous permettra par la suite, d'évaluer la puissance électrique totale produite par la pile considérée et d'estimer son rendement global tout en connaissant ses modes opératoires tels que la température, la pression, l'humidité de la membrane, et la composition des gaz...

Une courbe de polarisation est un graphique caractéristique donnant la tension (V) de la pile en fonction de la densité de courant électrique de décharge (i) pour un ensemble de conditions de fonctionnement bien définies. Cette courbe typique étant le résultat le plus commun des modèles est considérée comme le critère de performance le plus important.

Reproduire ce graphique est le but primaire du modèle proposé.

La tension de cellule est l'aspect le plus important de la modélisation des piles à combustible, car ce potentiel varie en fonction des diverses charges électriques et d'autres conditions opératoires appliquées, ainsi, il est essentiel que la tension des cellules soit connue.

En faisant appel à quelques notions thermodynamiques et corrélations semi empiriques disponibles dans la littérature, nous déterminerons la tension spécifique de la cellule et par conséquent, celle de la pile PEM en trois étapes :

1. Modélisation du potentiel maximum défini par les performances idéales de la pile.
2. Calcul des pertes principales de tension dues aux polarisations d'activation, ohmiques, et de concentration.
3. Déduction de la tension effective décrivant le fonctionnement réel de la PEMFC.

4.2.1 Hypothèses du modèle

Pour établir un modèle mathématique de la courbe considérée, un certain nombre d'hypothèses simplificatrices peuvent être envisagées ; d'une part pour faciliter la mise en équation des phénomènes étudiés et d'autre part pour avoir une valeur moyenne de la solution recherchée. Ainsi, s'agissant de notre modèle, nous supposons que:

1. La température de la pile PEM est parfaitement uniforme et sa valeur reste constante en tout point de ses cellules unitaires ;
2. Les gaz sont totalement saturés et parfaits pour la variation de pression ;
3. Pour un changement de température, les variations d'enthalpie et d'entropie sont égales à leurs valeurs à la température standard ;
4. L'eau produite de la réaction électrochimique est à l'état liquide ;
5. La pression partielle de l'eau produite par la cellule est égale à 1 atm.

4.2.2 Thermodynamique des piles à combustible

L'énergie totale se compose de deux types, [15]:

- a. Energie libre, G représente l'énergie disponible (ou libre) pour la conversion en travail utile sans que ce dernier soit effectué par un changement de pression et/ou de volume.
- b. Energie indisponible $T.S$ perdue suite à l'augmentation du désordre, ou l'entropie, du système.

Le travail maximum disponible pour une source de combustible est relié à l'énergie libre de la réaction dans le cas d'une pile à combustible. Cependant l'enthalpie (chaleur) de la réaction est la quantité pertinente dans le cas d'une machine thermique, et s'écrit [15]:

$$\Delta G_r = \Delta H_r - T \cdot \Delta S_r \quad (4.1)$$

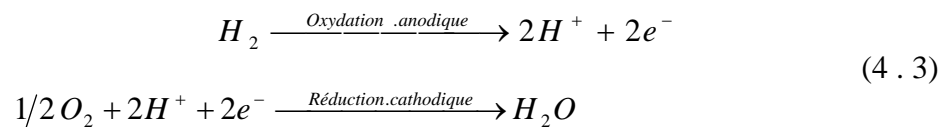
Dans laquelle :

- ΔG_r : Variation d'énergie libre de GIBBS, représente la quantité maximale d'énergie électrique disponible et dont le signe indique dans quel sens la réaction a tendance à se produire (réaction spontanée ou pas).
- ΔH_r : Variation d'enthalpie (énergie chimique stockée) de la réaction, désigne la quantité totale d'énergie thermique disponible.
- ΔS_r : Variation d'entropie de la réaction, représente la quantité de chaleur produite par une pile à combustible et son signe indique si la réaction est endothermique ou exothermique.

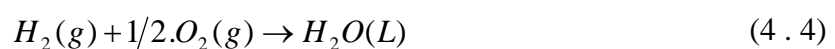
Par suite, la conversion d'énergie au sein d'une cellule de pile à combustible peut se résumer par l'équation ci-dessous [10] :

$$\text{Énergie chimique du combustible} = \text{Energie électrique} + \text{Energie calorifique} \quad (4.2)$$

Les réactions électrochimiques mises en jeu dans chaque électrode de la cellule de pile PEM ont été formulées précédemment au niveau du paragraphe [2. 4.2.1] du deuxième chapitre, [19] :



Par conséquent, l'équation globale régissant la réaction d'oxydoréduction dans la cellule s'écrit de la façon suivante, [19] :



L'équation ci-dessus peut être employée pour produire de l'énergie électrique et de la chaleur. Le travail électrique maximum délivré par une cellule de pile à combustible fonctionnant à température et pression constantes est donné par la variation d'énergie libre de formation de Gibbs ΔG_f entre l'état initial de réactifs ($H_2 + 1/2 O_2$) et l'état final (H_2O) :

$$\Delta G_f = \overset{\text{Produits}}{G_f} - \overset{\text{Réactifs}}{G_f} \quad (4.5)$$

Où G_f est l'énergie libre de formation de Gibbs qui est égale à l'énergie libre de Gibbs dont le potentiel nul est défini pour des éléments purs à la pression et température standard (PTS) : (298,15 K et 1 atmosphère) [20]. Pour simplifier l'analyse du modèle, la valeur de G_f est dorénavant donnée par unité de mole g_f . Dans ce cas l'équation (4.5) devient :

$$\Delta g_f = (g_f)_{H_2O} - (g_f)_{H_2} - \frac{1}{2}(g_f)_{O_2} \quad (4.6)$$

4.2.3 Performances idéales et potentiel réversible

Les performances idéales d'une cellule de pile PEM dépendent de la réaction électrochimique (4.4) qui a lieu entre l'hydrogène à l'anode et l'oxygène à la cathode et sont définies par le potentiel de NERNST [15].

Le potentiel réversible en circuit ouvert (OCV : Open Circuit Voltage) d'une cellule unitaire ($V_{CELLreversible}$) est la tension maximale que chaque cellule dans la pile peut produire indépendamment de la charge électrique appliquée [18].

V_{Nernst} représente le potentiel théorique maximum de la cellule quand elle opère à la température standard 298K. L'expression de V_{Nernst} inclue les variations de pressions des réactifs et des produits mais ne tient pas compte de la variation de température ; cette dernière sera décrite plus tard et, de ce fait, nous pouvons écrire [20]:

$$V_{CELLreversible} = V_{Nernst} + V_T^{difference} \quad (4.7)$$

D'autre part, l'expression du potentiel réversible ($V_{CELLreversible}$) pour une réaction qui produit deux électrons par molécule de combustible, comme celle de la pile PEM, est donnée par l'équation suivante [15] :

$$V_{CELLreversible} = \frac{-\Delta g_f}{2.F} \quad (4.8)$$

Dans laquelle :

$V_{CELLreversible}$: Potentiel réversible d'une cellule d'hydrogène;

Δg_f : Variation d'énergie libre de formation de Gibbs par mole ;

F : Constante de Faraday (96485,3 C/mole).

Cette dernière équation est fondamentale en technologie des piles à combustible et peut être déduite en supposant que la réaction globale (4.4) est réversible. Dans ce cas, le travail électrique effectué (charge \times potentiel réversible) en déplaçant la charge totale correspondant à deux moles d'électrons ($-2.F$ Coulombs) est égal au changement d'énergie utile par unité de mole (Δg_f) des réactifs (H_2 et O_2) et du seul produit H_2O [25].

4.2.3.1 Variation de la pression

Les pressions des produits et des réactifs jouent un rôle en affectant le potentiel réversible de la cellule élémentaire. Fondamentalement l'augmentation de la pression des réactifs augmente la quantité de réactifs sur la surface des électrodes et ainsi augmente la fréquence de l'activité chimique. Le changement d'énergie libre de Gibbs varie avec différentes pressions et températures de la cellule. Ceci modifie alternativement la tension réversible de chaque cellule.

Nous décrirons la variation de Δg_f de sa valeur exprimée à la pression et température standard.

Pour un gaz idéal, le terme thermodynamique « activité » est défini par, [20]:

$$a = \frac{P}{P_0} \quad (4.9)$$

Où :

P : Pression ou pression partielle du gaz ;

P_0 : Pression standard, 101,3 kPa (ou 1atm).

Pour la forme générale d'une réaction de pile suivante :



Le changement d'énergie libre de Gibbs par mole peut s'écrire en termes d'activité comme suit [15] :

$$\Delta g_f = \Delta g_f^0 + R.T.\ln\left(\frac{\prod[\text{activité.produt}]^m}{\prod[\text{activité.reactif}]^n}\right) = \Delta g_f^0 + R.T.\ln\left(\frac{[C]^\omega \cdot [D]^\delta}{[A]^\alpha \cdot [B]^\beta}\right) \quad (4.11)$$

En considérant la réaction (4. 9) et substituant les activités à leurs valeurs dans l'équation (4. 11), nous obtenons :

$$\Delta g_f = \Delta g_f^0 - R.T_{fc}.\ln\left(\frac{P_{H_2}^* \cdot \left(P_{O_2}^*\right)^{1/2}}{P_{H_2O}^*} \cdot \left(\frac{1}{P_0}\right)^{1/2}\right) \quad (4.12)$$

Avec :

Δg_f^0 : Changement d'énergie libre de formation de Gibbs par mole à la PTS et dont la valeur est égale à $-237,2.10^3$ J/mole ;

R : Constante universelle des gaz parfaits = 8,3145 J/K.mole ;

T_{fc} : Température de la cellule (K) ;

P_x^* : La pression partielle de la matière x en utilisant une unité choisie de pression,

P_0 : Pression standard en unité de pression utilisée ;

PTS : Pression et température standard, 298,15 K et 101,3 kPa (1atm).

Divisons les deux membres de l'équation (4. 12) par $- 2.F$ et considérons l'expression (4. 8) tout en sachant qu'à la température standard, $V_{CELL\ réversible}$ est égale à V_{Nernst} . L'effet de la pression sur V_{Nernst} comme montré en littérature, s'écrit ainsi :

$$V_{Nernst} = V^0 + \frac{R.T_{fc}}{2.F} \cdot \ln \left(\frac{P_{H_2}^* \cdot \left(P_{O_2}^* \right)^{1/2}}{P_{H_2O}^*} \cdot \left(\frac{1}{P_0} \right)^{1/2} \right) \quad (4 . 13)$$

Où :

V^0 : Représente le potentiel réversible de la cellule à la PTS et sa valeur est donnée par l'équation suivante [20]:

$$V^0 = \frac{-\Delta g_f^0}{2.F} = 1,229 \text{ V} \quad (4 . 14)$$

Puisque l'eau liquide est le produit principal de la réaction électrochimique, nous pouvons la supposer à la pression atmosphérique, ainsi des valeurs standard sont employées et toutes les valeurs des pressions partielles sont exprimées en atmosphères. Dans ces hypothèses, le potentiel réversible de la cellule à la température standard se réduit à :

$$V_{Nernst} = 1,229 + \frac{R.T_{fc}}{2.F} \cdot \ln \left(P_{H_2}^* \cdot \left(P_{O_2}^* \right)^{1/2} \right) \quad (4 . 15)$$

4. 2.3.2 Variation de la température

Après avoir montré l'effet des pressions partielles de réactifs sur le potentiel réversible V_{Nernst} , il nous reste actuellement à déterminer la contribution de variation de température sur l'expression de $V_{CELL\ réversible}$ quand la température de la cellule diffère de celle de référence 298,15k.

La plupart des méthodes publiées qui calculent la valeur de $V_T^{différence}$ utilisent une hypothèse applicable pour les cellules de pile opérant à basse température (25 °C à 80 °C) et trouvent la variation de $V_{CELL\ réversible}$ pour une cellule PEMFC due à un changement de température comme ci-après [20]:

$$V_T^{difference} = -\frac{\Delta s_f}{2.F} \cdot (T_{fc} - T_{ref}) \quad (4.16)$$

Avec :

Δs_f : Variation d'entropie molaire de la réaction (4.4) à PTS,

T_{ref} : Température de référence, 298,15 K

Cette équation s'obtient en calculant l'écart entre la variation d'énergie libre de formation à la température standard 298,15K, Δg_f^0 et le changement d'énergie libre de Gibbs à la température de la cellule Δg_T en supposant que la réaction chimique se déroule à température constante et que les amplitudes de Δh_T et Δs_T nécessaires pour l'évaluation de Δg_T sont relativement peu sensibles à la température, car les enthalpies et les entropies des réactifs et des produits s'accroissent de même valeur avec l'augmentation de la température, ainsi leur différence est presque identique, [20].

Remplaçons maintenant cette dernière équation dans l'expression du potentiel réversible, alors $V_{CELLreversible}$ fait apparaître des variations de température et de pressions :

$$V_{CELLreversible} = \frac{-\Delta g_f^0}{2.F} + \frac{R.T_{fc}}{2.F} \cdot \ln \left(\frac{P_{H_2}^* \cdot (P_{O_2}^*)^{1/2}}{P_{H_2O}^*} \cdot \left(\frac{1}{P_0} \right)^{1/2} \right) - \frac{\Delta s_f}{2.F} \cdot (T_{fc} - 298,15) \quad (4.17)$$

L'équation ci-dessus peut être simplifiée en utilisant :

- Les valeurs de Δs_f , Δg_f^0 , R , F à PTS ;
- L'unité de pression atm pour les diverses pressions partielles ;
- La pression atmosphérique (1atm) pour $P_{H_2O}^*$.

Nous trouvons la forme la plus générale du potentiel idéal (réversible) de la cellule élémentaire PEMFC [26]:

$$V_{CELLreversible} = 1,229 - (8,453 \cdot 10^{-4}) (T_{fc} - 298,15) + 4,3085 \cdot 10^{-5} \times T_{fc} \cdot \left[\ln \left(P_{H_2}^* \right) + \frac{1}{2} \cdot \ln \left(P_{O_2}^* \right) \right] \quad (4.18)$$

Dans laquelle :

T_{fc} : Température de la cellule en (K);
 P_{H_2}, P_{O_2} : Pressions partielles des réactifs en (atm).

En fait, cette valeur est théorique, et n'est valable qu'à courant nul. Tout débit d'électrons entraîne un certain nombre d'irréversibilités qui dépendent, entre autres, de l'intensité du courant fourni [8].

4.2.4 Performances effectives

Lorsque la pile débite et le courant est tiré de la cellule pour alimenter la charge, des surtensions surgissent au niveau des électrodes et dans la membrane. De ce fait, la tension utilisable s'éloigne de l'équilibre à cause de ces pertes irréversibles [18].

Ces pertes ou polarisations entraînent, pour une cellule de potentiel idéal $V_{CELLreversible}$, une chute de tension V_{Pertes} et dans ce cas le potentiel réel sera égal à [15] :

$$V_{CELLactuel} = V_{CELLreversible} - V_{Pertes} \quad (4.19)$$

Dans une cellule électrochimique, trois types de surtensions peuvent se produire et sont classifiés en, [18] :

- Polarisation d'activation V_{act} : résultant de la cinétique des réactions d'électrodes ;
- Polarisation ohmique V_{ohm} : résultant des résistances ioniques et électroniques ;
- Polarisation de diffusion V_{conc} : résultant des gradients de concentration des réactifs.

Ainsi la chute de tension n'est autre que la somme des contributions des trois polarisations citées plus haut. Sa valeur est donnée par [15, 21] :

$$V_{Pertes} = V_{act} + V_{ohm} + V_{conc} \quad (4.20)$$

Nous montrons dans la figure 4.2 la forme générale de la courbe caractéristique d'une cellule de type PEMFC qui peut rudement être divisée en trois régions [18], chacune régie par une surtension différente.

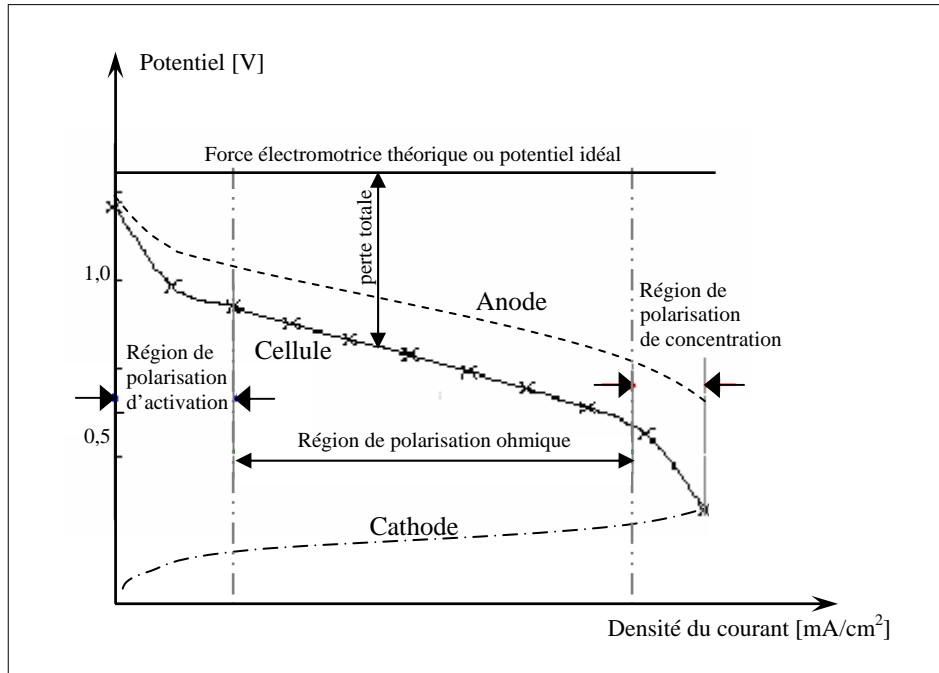


Figure 4. 2 : Courbe de polarisation d'une cellule PEMFC avec les contributions relatives des surtensions [27].

Nous pouvons constater sur cette figure que: la tension de la cellule représente une courbe décroissante en fonction de la densité du courant (i), où pour de faibles valeurs de cette dernière, la polarisation d'activation est dominante.

Les pertes ohmiques, directement proportionnelles à la densité de courant, deviennent ensuite prépondérantes sur une large gamme de i et c'est dans ce domaine que nous tenterons de travailler par la suite.

Enfin, à hautes densités de courant, la cinétique de diffusion des gaz à travers les électrodes devient le facteur limitant en particulier au niveau de la cathode dans le cas où l'air est utilisé à la place de l'oxygène pur.

L'effet global du flux de courant dans une cellule, est d'augmenter le potentiel de la cathode et de diminuer le potentiel de l'anode, et donc de réduire la tension de la pile.

4.2.4.1 Polarisation d'activation (V_{act})

La polarisation d'activation est présente quand le taux d'une réaction électrochimique à la surface de l'électrode est contrôlé par le ralentissement de la cinétique pour cette électrode. En d'autres termes, la polarisation d'activation est directement reliée au taux de la réaction électrochimique qui, pour qu'elle puisse démarrer, les réactifs doivent dépasser une barrière d'activation.

La relation entre la polarisation d'activation et la densité de courant est décrite par l'équation de TAFEL pouvant être rapprochée par l'expression semi empirique suivante [26]:

$$V_{act} = v_0 + v_a (1 - e^{-C_1 \cdot i}) \quad (4.21)$$

Avec :

$$C_1 = 10$$

$$v_0 = 0,279 - 8,5 \cdot 10^{-4} \cdot (T_{fc} - 298,15) + 4,308 \cdot 10^{-5} \cdot T_{fc} \left[\ln \left(\frac{P_{ca} - P_{sat}}{1,01325} \right) \right] + \frac{1}{2} \times$$

$$\times \ln \left(\frac{0,1173 \cdot (P_{ca} - P_{sat})}{1,01325} \right)$$

$$v_a = \left(-1,618 \cdot 10^{-5} \cdot T_{fc} - 1,618 \cdot 10^{-2} \right) \left(\frac{P_{O_2}^*}{0,1173} + P_{sat} \right)^2 + \left(1,8 \cdot 10^{-4} \cdot T_{fc} - 0,166 \right) \times$$

$$\times \left(\frac{P_{O_2}^*}{0,1173} + P_{sat} \right) + \left(-5,8 \cdot 10^{-4} \cdot T_{fc} + 0,5736 \right)$$

Dans lesquelles :

P_{ca} : Pression totale à la cathode (bar) ;

P_{sat} : Pression de saturation de vapeur (bar), exprimée en (Pa) par la relation de CLAPEYRON en fonction de la température absolue T comme suit [19] :

$$P_{sat}(T) = P_{sat}^0 \cdot \exp \left[\frac{L_v \cdot M_{H_2O}}{R} \cdot \left(\frac{1}{T_{sat}^0} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (4.22)$$

Où :

P_{sat}^0, T_{sat}^0 : Pression et température de saturation au point de référence (Pa, K) ;

M_{H_2O} : Masse molaire de la molécule d'eau (kg/mole) ;

L_v : Chaleur latente de vaporisation d'eau (J/kg), donnée par une progression de puissances ascendantes en termes de température absolue, [19] :

$$L_v = 1,73287 \cdot 10^6 + 1,03001 \cdot 10^4 \cdot T - 4,47755 \cdot 10^1 \cdot T^2 + 7,66293 \cdot 10^{-2} \cdot T^3 - 5,5058 \cdot 10^{-5} \cdot T^4 \quad (4.23)$$

4.2.4.2 Polarisation ohmique (V_{ohm})

Les pertes ohmiques sont dues à la résistance que rencontre le flux d'ions en traversant l'électrolyte et à la résistance que rencontrent les électrons dans les électrodes, les plaques bipolaires et le circuit électrique. Les pertes ohmiques sont principalement dues à l'électrolyte et peuvent être réduites en diminuant l'épaisseur de la membrane et en améliorant sa conductivité ionique.

L'électrolyte et les électrodes obéissant à la loi d'OHM et la chute de tension correspondant à la perte ohmique proportionnelle à la densité de courant i peut être exprimée par l'équation, [15]:

$$V_{ohm} = i \cdot R_{ohm} \quad (4.24)$$

Dans laquelle la résistance ohmique, $R_{ohm}(\Omega)$, dépend fortement de l'humidité de membrane et de la température de cellule. Plusieurs études dans la littérature prouvent que la résistance ohmique est une fonction de la conductivité de membrane σ_m , sous la forme, [26]:

$$R_{ohm} = \frac{t_m}{\sigma_m} \quad (4.25)$$

Avec :

t_m : Epaisseur de l'électrolyte (cm) ;

σ_m : Conductivité de la membrane ($\Omega \cdot \text{cm}$)⁻¹, donnée en fonction de la teneur en eau de la membrane et de la température de cellule par la relation suivante [17]:

$$\sigma_m = \begin{cases} \exp \left[1268 \cdot \left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T_{fc}} \right) \right] \cdot [0,5139 \lambda_m - 0,326] & \text{pour : } \lambda_m \geq 1 \\ \sigma_m (\lambda_m = 1) & \text{pour : } 0 < \lambda_m < 1 \end{cases} \quad (4.26)$$

Dans cette dernière équation, la valeur de la teneur en eau de la membrane λ_m (mole_{H2O}/mole_{SO3}) varie entre 0 et 14, ce qui correspond à une humidité relative (HR) de 0% et 100% respectivement [26].

4.2.4.3 Polarisation de concentration (V_{conc})

Lorsque, au niveau d'une électrode, existe une chute de potentiel due à l'incapacité du système à maintenir la concentration initiale des réactants, nous assistons alors à la formation d'un gradient de concentration. De nombreux facteurs peuvent contribuer à la polarisation de concentration, [18]:

- ▶ La faible diffusion du gaz à travers les électrodes poreuses ;
- ▶ La dissolution des réactants ou des produits dans l'électrolyte ;
- ▶ La diffusion des réactifs ou des produits du site de la réaction vers l'électrolyte ou l'inverse.

À des densités de courants élevées, la faible vitesse de transport des réactifs ou des produits vers le site de la réaction est la contribution majeure à la polarisation de concentration, ce qui amène une brusque chute du potentiel de la pile.

Nous pouvons exprimer ces pertes par l'équation suivante [26]:

$$V_{conc} = i \cdot \left(C_2 \cdot \frac{i}{i_{max}} \right)^{C_3} \quad (4.27)$$

Dans laquelle :

$$C_3 = 2$$

$$i_{max} = 2,2$$

$$C_2 = \begin{cases} (7,16 \cdot 10^{-4} \cdot T_{fc} - 0,622) \left(\frac{P_{O_2}^*}{0,1173} + P_{sat} \right) + (-1,45 \cdot 10^{-3} \cdot T_{fc} + 1,68) & \text{pour: } \left(\frac{P_{O_2}^*}{0,1173} + P_{sat} \right) < 2atm \\ (8,66 \cdot 10^{-5} \cdot T_{fc} - 0,068) \left(\frac{P_{O_2}^*}{0,1173} + P_{sat} \right) + (-1,6 \cdot 10^{-4} \cdot T_{fc} + 0,54) & \text{pour: } \left(\frac{P_{O_2}^*}{0,1173} + P_{sat} \right) \geq 2atm \end{cases}$$

Les coefficients dans les expressions (4 . 21) et (4 . 27) sont obtenus en supposant que la cellule PEM fonctionne dans un environnement parfaitement contrôlé, où le gaz de cathode est entièrement humidifié et la stœchiométrie de l'oxygène S_{O_2} (rapport de l'oxygène fourni à l'oxygène réagi) est égale à 2, [26]. De ce fait, les équations résultantes sont exprimées comme fonctions de la pression partielle d'oxygène (en bars) dont la valeur en atmosphères est donnée par [28]:

$$P_{O_2}^* = P_{ca}^{moy} - P_{sat} - P_{ca}^{moy} \cdot X_{N_2}^{moy} \cdot \exp\left(\frac{0,291.i}{T_{fc}^{0,832}}\right) \quad (4 . 28)$$

Où :

$X_{N_2}^{moy}$: Fraction molaire moyenne du nitrogène. En admettant que l'air est saturé à l'entrée et à la sortie de la cathode (hypothèse 2), $X_{N_2}^{moy}$ est liée à la stœchiométrie de l'oxygène comme suit [28]:

$$X_{N_2}^{moy} = \frac{1}{2} \cdot \left(X_{N_2}^{In} + \left(0,79 \cdot \frac{P_{ca}^{Out} - P_{sat}}{P_{ca}^{Out}} \cdot \frac{S_{O_2}}{S_{O_2} - 0,21} \right) \right)$$

Avec :

$X_{N_2}^{In}$: Fraction molaire du nitrogène dans l'air à l'entrée de la cathode ;

P_{ca}^{moy} : Pression totale moyenne de l'air à la cathode donnée en (atm) par [28]:

$$P_{ca}^{moy} = \frac{P_{ca}^{In} + P_{ca}^{Out}}{2} = P_{ca}$$

P_{ca}^{In} , P_{ca}^{Out} : Pression totale de l'air respectivement à l'entrée et la sortie de la cathode (atm).

D'après l'hypothèse 2 de notre modèle, le gaz d'hydrogène est fourni pur et saturé à l'anode à partir d'un réservoir avec un débit d'admission instantanément ajusté par une valve, tel qu'il maintient une différence minimum de pression à travers la membrane. Nous admettons en plus, que le débit à la sortie anodique représentant la purge d'hydrogène est nul.

Dans ce cas, la pression partielle de l'hydrogène $P_{H_2}^*$ apparaissant dans l'équation (4. 18) s'écrit ainsi [26, 28] :

$$P_{H_2}^* = P_{An} - P_{sat} \quad (4 . 29)$$

Dans laquelle:

P_{An} : Pression totale à l'anode de la cellule (atm) ;

P_{sat} : Pression de saturation de vapeur (atm).

4. 2.5 Rapports stœchiométriques des réactifs

Le rapport de stoechiométrie S_g [20, 28], défini comme l'inverse de l'utilisation U_g [15, 22], se rapporte à la proportion de toute la quantité de gaz (carburant ou comburant) admise à l'entrée de la pile comparée à celle qui réagit électrochimiquement [15, 28]:

$$S_g = \frac{1}{U_g} = \frac{\dot{m}_{g_{In}}}{\dot{m}_{g_{Consommé}}} = \frac{\dot{m}_{g_{In}}}{(\dot{m}_{g_{In}} - \dot{m}_{g_{Out}})} \quad (4.30)$$

Dans laquelle $\dot{m}_{g_{In}}$ et $\dot{m}_{g_{Out}}$ représentent respectivement les débits massiques du gaz « g » à l'entrée et à la sortie de la pile. Ce rapport est optimisé pour différentes conditions de fonctionnement selon le taux de refroidissement, le niveau d'humidité et le débit de masse exigé [20].

Nous montrons ci-après les différents calculs de ce rapport pour les deux réactifs impliqués dans la réaction électrochimique de la cellule PEM : l'air et l'hydrogène.

4. 2.5.1 Stœchiométrie d'air et d'oxygène

Comme mentionné dans le paragraphe [4. 3.2] et compte tenu de la réaction partielle de réduction de l'oxygène donnée par la seconde ligne de l'expression (4. 3), la charge électrique produite par une demie mole d'oxygène est donnée par :

$$\text{Charge totale} = \text{Nombre d'électrons} \times \text{Charge d'électrons} = - 2.F \text{ (Coulombs)}.$$

Ainsi, pour chaque mole de O_2 , nous écrivons :

$$\text{Charge totale} = - 4.F \text{ (Coulombs)}.$$

En divisant par le temps, réarrangeant et en utilisant le courant conventionnel (qui est opposé à l'écoulement réel de charge), pour chaque cellule de pile nous obtenons :

$$O_2 \text{ utilisé par cellule} = \frac{I}{4.F} \quad (\text{moles/s})$$

Pour la pile entière c'est :

$$O_2 \text{ total utilisé} = \frac{I.N_{cell}}{4.F} \quad (\text{moles/s})$$

Où:

I : Intensité du courant de la cellule élémentaire (A),

N_{cell} : Nombre total de cellules dans la pile.

En outre l'expression doit être en termes d'air et non pas d'oxygène puisque l'air est le gaz d'admission. En utilisant la proportion molaire de l'oxygène dans l'air de 0,21 [15] et la masse molaire de l'air de $28,97.10^{-3} \text{ kg.mole}^{-1}$ [20], le débit d'air requis s'écrit en (kg.s^{-1}) comme suit:

$$\dot{m}_{Air \text{ utilisé}} = \frac{28,97.10^{-3}.I.N_{cell}}{0,21.F.4} = 3,57.10^{-7}.I.N_{cell} \quad (4.31)$$

Le rapport stoechiométrique pour l'air est alors :

$$S_{Air} = \frac{\dot{m}_{Air \text{ admis}}}{3,57.10^{-7}.I.N_{cell}} \quad (4.32)$$

Dans laquelle:

$\dot{m}_{Air \text{ admis}}$: Débit massique d'air total introduit en (kg/s).

4.2.5.2 Stœchiométrie d'hydrogène

Un type de calcul semblable au précédent est employé pour déterminer le rapport stoechiométrique S_{H_2} ; mais cette fois-ci en considérant la première réaction d'oxydation de l'hydrogène dans l'expression (4.3). La charge totale par mole de gaz d'hydrogène est égale à celle d'une demie mole de O_2 , c'est à dire, $-2.F$ Coulombs.

De ce fait, le débit molaire de H_2 utilisé par la pile entière est donné par :

$$H_2 \text{ total utilisé} = \frac{I.N_{cell}}{2.F} \quad (\text{moles/s})$$

En prenant la valeur de la masse molaire de l'hydrogène égale à $2,0158.10^{-3}$ kg.mole⁻¹ (Tableau 1.3), ceci nous permet de calculer le débit massique de H₂ réellement consommé :

$$\dot{m}_{H_2 \text{ utilisé}} = \frac{2,0158.10^{-3} \cdot I \cdot N_{\text{cell}}}{2 \cdot F} = 1,045.10^{-8} \cdot I \cdot N_{\text{cell}} \quad (4.33)$$

Le rapport stoechiométrique pour H₂ est alors :

$$S_{H_2} = \frac{\dot{m}_{H_2 \text{ admis}}}{1,045.10^{-8} \cdot I \cdot N_{\text{cell}}} \quad (4.34)$$

Avec :

$\dot{m}_{H_2 \text{ admis}}$: Débit massique d'hydrogène admis (kg/s).

Cependant, l'hydrogène peut être consommé par diverses autres voies, comme par réaction chimique avec l'oxygène et les composants de la cellule ou bien les pertes par fuites hors de la cellule. Ces voies augmentent l'utilisation apparente de l'hydrogène sans contribuer à l'énergie électrique produite par la cellule de pile.

Dans une pile PEMFC, chaque ensemble « membrane- électrodes » doit être alimenté de la même manière, ce qui suppose un débit et des pressions partielles identiques. Ces ensembles étant en série, tout défaut pour l'un d'eux se répercute sur tous les autres. Pour cette raison, les réactifs sont souvent mis en sur-stoechiométrie en particulier l'air qui contient 79% en volume d'espèces inertes (N₂).

En fait, à cause de ces excès, l'hydrogène ne sera pas entièrement consommé et pourra donc soit être purgé, recyclé ou bien utilisé dans un brûleur catalytique tel que décrit dans le paragraphe [3. 2.2.1] du chapitre précédent.

4. 2.6 Puissance électrique de la cellule

La puissance électrique que peut développer une cellule de pile PEM est donnée par l'équation suivante [15]:

$$P_{\text{cell}} = i \cdot A_{\text{cell}} \cdot V_{\text{CELLactuel}} = V_{\text{CELLactuel}} \cdot I \quad (4.35)$$

Dans laquelle :

P_{cell} : Puissance électrique (W);

A_{cell} : Aire de la surface électroactive (cm²);

i : Densité du courant électrique (A/cm²), donnée par le rapport de l'intensité du courant à la surface électroactive ($i = \frac{I}{A_{cell}}$).

4. 2.7 Tension et puissance de la pile «PEMFC»

Une pile à combustible PEMFC (réacteur ou stack) est constituée d'un empilement de plusieurs cellules élémentaires assemblées avec une connexion en série et une alimentation en parallèle des gaz réactifs [8]. Par suite, la tension de la pile V_{pile} est calculée en multipliant la tension de cellules, $V_{CELLactuel}$, par leur nombre total, N_{cell} , dans la pile [26] :

$$V_{pile} = N_{cell} \cdot V_{CELLactuel} \quad (4.36)$$

L'empilement étant alors caractérisé par sa plage de tension en fonctionnement V_{pile} et par l'intensité maximale I , sa puissance électrique sera égale à [29]:

$$P_{pile} = N_{cell} \cdot P_{cell} = N_{cell} \cdot i \cdot A_{cell} \cdot V_{CELLactuel} = V_{pile} \cdot I \quad (4.37)$$

4. 2.8 Rendement thermique de la cellule

Le rendement thermique d'un dispositif de conversion d'énergie est définie comme étant la quantité produite d'énergie utile relativement au changement d'énergie chimique stockée (généralement désignée sous le nom d'énergie thermique) et libérée quand un carburant réagit avec un oxydant, [15] :

$$\eta_{th} = \frac{\text{Énergie utile}}{\Delta H}$$

Dans le cas idéal d'un convertisseur électrochimique, tel qu'une cellule PEMFC, la variation d'énergie libre de Gibbs, ΔG est disponible autant qu'énergie électrique utile et le reste de l'enthalpie de réaction est libéré comme chaleur à la température de conversion. En pratique, une partie de l'énergie de Gibbs est également convertie en chaleur par l'intermédiaire des mécanismes de perte [20].

Le rendement idéal d'une cellule de pile PEM, fonctionnant réversiblement, est alors donné par [20] :

$$\eta_{th\ Idéal} = \frac{-\Delta g_f}{-\Delta h_f} \quad (4.38)$$

Dans laquelle :

Δg_f : Variation d'énergie libre de formation de Gibbs en (J/mole) ;

Δh_f : Variation d'enthalpie de formation en (J/mole) qui représente l'énergie thermique de la réaction globale (4. 4) et dont la valeur est étroitement liée à l'état du produit (H₂O) de la réaction de combustion de l'hydrogène et de l'oxygène purs [25, 30].

Dans les conditions standard (PTS), nous avons les valeurs numériques suivantes (Tableau 1.3) et [20] :

$$\Delta g_f^0 = -237,2.10^3 \text{ (J/mole);}$$

$$\Delta h_f^0 = PCI_{H_2} (LHV) = -241,83.10^3 \text{ (J/mole)} \Rightarrow \text{Produit de la réaction est la vapeur d'eau ;}$$

$$\Delta h_f^0 = PCS_{H_2} (HHV) = PCI_{H_2} + L_v = -285,84.10^3 \text{ (J/mole)} \Rightarrow \text{Le produit est de l'eau liquide.}$$

Concernant notre modèle, l'eau est supposée produite à l'état liquide, par conséquent, le rendement thermique idéal de la cellule devient égal à :

$$\eta_{th\ Idéal} = \frac{-237,2.10^3}{-285,84.10^3} = 0,83 \quad (4.39)$$

Le rendement thermique effectif d'une cellule de pile PEM opérant à la température T_{fc} peut être exprimé sous forme de rapport entre le potentiel réel de fonctionnement de la cellule et le potentiel idéal [15]:

$$\begin{aligned} \eta_{th\ Actuel} &= \frac{\text{Energie utile}}{\Delta h_f} = \frac{(\text{Puissance utile}) \times (\text{Temps})}{\Delta g_f / 0,83} = \\ &= \frac{0,83 \cdot (V_{CELLactuel} \cdot I)}{V_{CELLreversible} \cdot I} = 0,83 \cdot \left(\frac{V_{CELLactuel}}{V_{CELLreversible}} \right) = 0,83 \cdot \eta_{Elect} \end{aligned} \quad (4.40)$$

Avec :

I : Intensité du courant électrique généré par la cellule (A), exprimée par le rapport de la charge totale des électrons mis en jeu au temps de leur passage :

$$I = \frac{\text{Charge totale}}{\text{Temps}}$$

$V_{CELLactuel}$: Tension effective aux bornes de la cellule en (V), déduite de l'expression (4. 19);

$V_{CELLreversible}$: Tension théoriquement récupérable de la cellule, donnée en (V) par l'éq. (4. 18);

η_{Elect} : Rendement électrique de la cellule égal au rapport des deux potentiels ci-dessus.

Le rendement thermique réel de la cellule fonctionnant aux conditions de pression et de température standard s'écrit comme suit [15]:

$$\eta_{th Actuel} = \frac{0,83.V_{CELLactuel}}{V^0} = 0,675 \times V_{CELLactuel} \quad (4 . 41)$$

Enfin, la formule du rendement propre d'un empilement est (avec une stœchiométrie en hydrogène de 1) [13]:

$$\eta_{pile} = \frac{V_{pile}}{N_{cell} \cdot 1,48} \quad (4 . 42)$$

Ainsi, pour avoir un haut rendement de pile, il faut fonctionner à une tension élevée. Cependant, dans la chaîne de traction électrique d'un véhicule, la plage de tension de sortie est fonction du système d'entraînement et de l'architecture électrique. En effet, les moteurs-roues équipant les véhicules de taille moyenne fonctionnent à une tension nominale comprise entre 250 et 400 Volts [22], parce que d'une part une haute tension est nécessaire pour les petits composants efficaces de propulsion, mais d'autre part l'écart entre la plus basse tension en puissance de traction maximale et, la tension la plus élevée durant la marche à vide devrait être aussi petit que possible. Dans ce cas, c'est au convertisseur d'adapter les niveaux de tension et de protéger la pile contre tout courant inverse [13].

4. 2.9 Choix du point nominal de fonctionnement

Pour obtenir les caractéristiques voulues en tension et courant relatives au cahier des charges d'un projet donné. Les cellules de pile PEMFC doivent opérer autour d'un point de fonctionnement optimum choisi sur leur courbe de polarisation ($V=f(i)$) [8]:

- L'intensité maximale de la pile est généralement la valeur du courant pour laquelle nous passons de la région de résistance ohmique à la région de diffusion (polarisation de concentration, (Figure 4.2), ce qui représente la zone typique de fonctionnement d'une pile à combustible [13].
- La tension de la pile est proportionnelle au nombre de cellules en série N_{cell} et à la tension de fonctionnement des cellules correspondant à l'intensité maximale sur le graphe $V=f(i)$ (équation (4. 36)). Par conséquent, l'obtention d'une tension élevée en pleine charge nécessite un nombre très élevé de cellules élémentaires.

La tension commune de conception de cellule PEM est de 0,7 volts, mais cette valeur peut varier entre 0,6 et 0,8 volts selon le courant électrique tiré de la réaction électrochimique [13, 30].

En raison des fluctuations de charge typiques aux piles à combustible animant les voitures, nous estimons qu'une tension moyenne des cellules de 0,75 volts peut être représentative pour des cycles de conduite standard [30].

Nous avons montré sur la figure 4.3 deux positions pour le point de fonctionnement d'une cellule de pile PEMFC avec leurs énergies : électrique et calorifique perdue; cette dernière se déduit de la relation (3. 1) du chapitre 3.

En pratique, deux configurations pour la pile de type PEMFC doivent être différenciées [22]:

4. 2.9.1 Disposition au point « A »

Pour de faibles densités de courant, correspond une tension de cellule élevée allant de 0,6 à 0,7 Volts [13]. Par conséquent, un haut rendement thermique défini par rapport à la puissance calorifique dans le combustible (équation (4. 41)).

Afin d'obtenir la quantité de puissance requise dans ces conditions, la surface active des électrodes sera surdimensionnée, ce qui constitue un poids, volume et coût plus significatifs, puisque les coûts matériels sont directement proportionnels au secteur actif des cellules.

Ainsi, concevoir une pile PEMFC pour un niveau de rendement plus élevé augmente les frais financiers, mais diminue le coût du carburant.

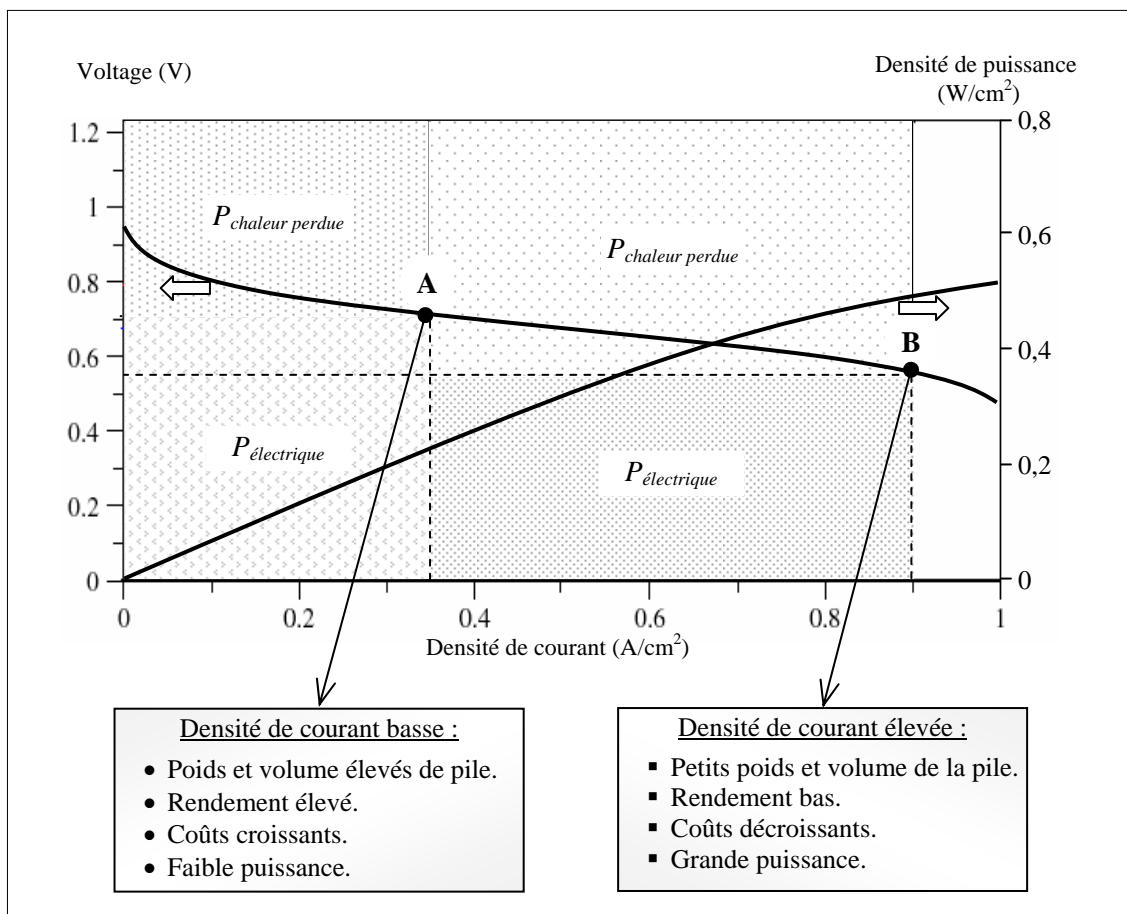


Figure 4. 3 : Deux positions du point nominal d'opération d'une cellule PEMFC avec leurs atouts et désavantages [22].

4. 2.9.2 Disposition au point « B »

La même pile fonctionnant sous une tension plus basse devient compacte, légère et bon marché et pourra générer une grande densité de courant, avec une puissance disponible beaucoup plus importante (équation (4. 41)) mais un rendement plus faible. En même temps, il faut noter que le fonctionnement des cellules sous charge élevée (forte intensité de courant) réduit la durée de vie de la pile PEMFC [22].

4. 2.10 Rendement global du système pile à combustible «PEMFC»

Un système « pile à combustible » est constitué de la ou les pile(s) à combustible et de divers auxiliaires. En effet, l'alimentation en combustible, en comburant, et la gestion de l'eau sont quelques unes des fonctions indispensables à ce type de générateur (voir section [3. 2] du dernier chapitre).

Toutes ces fonctions ont une forte influence sur le rendement du système pile à combustible et que nous pouvons illustrer par le schéma ci- dessous :

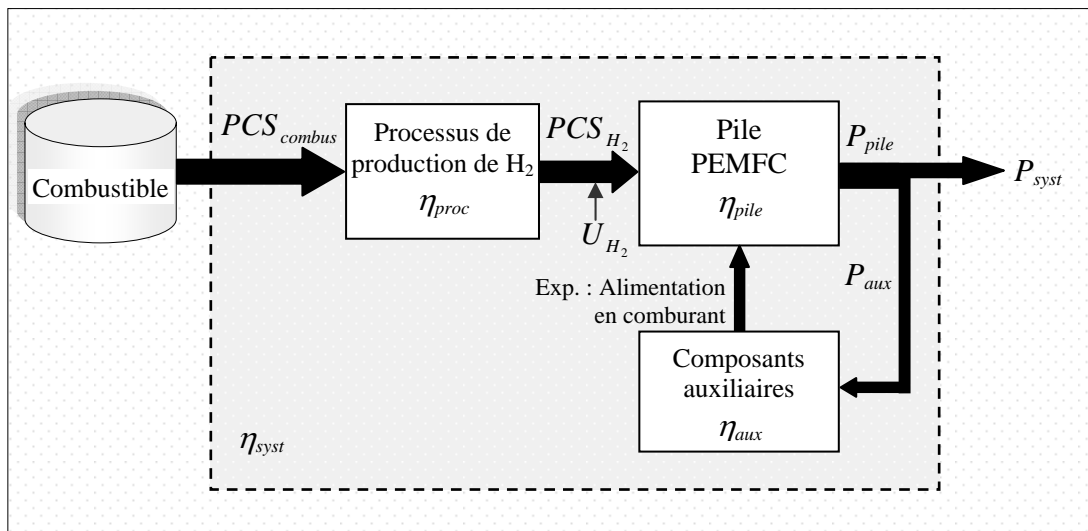


Figure 4. 4 : Rendements des différents composants du système pile « PEMFC ».

La fonction d'alimentation en comburant peut se révéler être un gros consommateur de puissance [13, 22], surtout si la pile à combustible fonctionne à pression élevée (de 2 à 3 bars). Dans ce cas, un système de compression motorisé électriquement est piloté en vitesse de plusieurs kilowatts est à intégrer dans le système pile à combustible [13, 23].

En outre, la pile de type PEMFC use une fraction de l'électricité produite pour fournir la puissance aux pompes, aux ventilateurs, aux réchauffeurs, aux contrôleurs et aux électrovannes etc., qui sont nécessaires pour couvrir sa propre demande.

La partie d'électricité consommée par ces auxiliaires n'est pas disponible pour la puissance nette du système P_{syst} et peut être définie par une efficacité parasite η_{aux} ou par la consommation auxiliaire P_{aux} . Ainsi la puissance électrique brute devant être assurée par la pile à combustible découle de, [22] :

$$P_{pile} = P_{syst} + P_{aux} = \frac{P_{syst}}{\eta_{aux}} \quad (4.43) \quad \text{Ou bien:} \quad \eta_{aux} = \frac{P_{syst}}{P_{pile}} \quad (4.44)$$

Typiquement, pour des systèmes de pile à combustible de haute efficacité, le rendement η_{aux} est de l'ordre de 80 à 95% [22], et à bord des véhicules, les composants périphériques de PEMFC consomment 10% ou plus du rendement de puissance évalué de pile [30].

De plus, L'approvisionnement en combustible par l'un des procédés de production d'hydrogène à partir d'autres charges (essence, méthanol...), (voir chapitre 1 et paragraphe [3.2.1.1] de ce mémoire), est soumis de même à un rendement de processus η_{proc} qui peut être défini par la puissance thermique de l'hydrogène produit, liée à celle contenue dans le carburant primaire admis [22] :

$$\eta_{proc} = \frac{\dot{m}_{H_2 \text{ admis}} \cdot PCS_{H_2}}{\dot{m}_{combust} \cdot PCS_{combust}} \quad (4.45)$$

Avec :

- $\dot{m}_{combust}$: Débit massique du combustible primaire (kg/s);
- $\dot{m}_{H_2 \text{ admis}}$: Débit massique de l'hydrogène à la sortie du processus (kg/s), (relation (4.34));
- PCS_{H_2} : Pouvoir calorifique supérieur de l'hydrogène (J/kg);
- $PCS_{combust}$: Pouvoir calorifique supérieur du carburant (J/kg);

Pour les procédés de transformation embarqués dans des véhicules et compte tenu de l'utilisation d'hydrogène, la valeur du rendement de conversion η_{proc} pour un réacteur POX alimenté en essence est de 69,4%, tandis que pour un processus de vaporeformage du méthanol, elle est estimée à 62% [7].

Le rendement global de conversion d'énergie du combustible en puissance électrique nette dans le système complet de pile à combustible s'écrit comme suit [13, 22]:

$$\eta_{syst} = \frac{P_{syst}}{m_{combust} \cdot PCS_{combust}} = \eta_{proc} \cdot U_{H_2} \cdot \eta_{pile} \cdot \eta_{aux} \quad (4.46)$$

Dans lequel :

U_{H_2} : Utilisation de l'hydrogène déduite de l'expression (4.30) ;

η_{pile} : Rendement de la pile à combustible PEMFC donné par l'équation (4.42).

Comme nous pouvons le remarquer, le rendement global du système pile à combustible est abaissé par la demande énergétique parasite élevée de ses différents composants.

Les relations (4.42) et (4.46) montrent la nécessité de trouver un compromis sur les paramètres de fonctionnement de la pile à combustible (pression, température, etc.) afin d'opérer à une tension de cellule élevée tout en limitant la consommation des auxiliaires. Cependant, l'avantage essentiel d'une pile à combustible pour la production d'électricité réside dans le fait que son rendement de conversion reste très élevé, non limité par le rendement de Carnot et surpasse largement les résultats des meilleurs systèmes thermodynamiques classiques, de type turbine ou moteur à gaz [8, 10, 15].

Après avoir établi un modèle mathématique capable de simuler le comportement électrique d'une cellule de pile PEMFC et développé toutes ses caractéristiques (puissances, rendements...), nous avons élaboré un code de calcul pour l'étude des performances de la cellule en fonction des paramètres opératoires donnés (pressions partielles, température, humidité, stœchiométrie,...). Ceci nous permettra par la suite d'évaluer la puissance électrique nette tirée de la pile à combustible PEMFC qui une fois intégrée avec ses divers systèmes auxiliaires dans une voiture, constituera la source d'énergie électrique pour sa chaîne de traction.

L'organigramme du programme numérique élaboré est présenté dans l'appendice B, quant à l'ensemble de ses résultats générés, ils seront exposés et discutés dans le sixième chapitre de ce mémoire.

CHAPITRE 5

MODELISATION D'UN VEHICULE ANIME PAR UNE PILE « PEMFC »

Adaptée au véhicule électrique, la pile à combustible de type PEMFC sera le maillon central d'un système électrogène d'autant plus complexe qu'il intégrerait la production d'hydrogène à bord. En effet, ce type de pile a suscité beaucoup d'attention dans les deux dernières décennies en raison de sa basse température de fonctionnement, sa puissance spécifique élevée, son rendement et sa longévité relativement importants..., faisant de lui le meilleur candidat particulièrement approprié aux applications mobiles [31].

Dans la chaîne de traction du véhicule électrique, la pile à combustible se trouve dans la partie « source d'énergie électrique » ou plus prosaïquement « groupe électrogène » : elle en est le maillon central. Ce groupe se situe entre le réservoir de combustible et la partie motorisation de la chaîne de traction contenant le groupe motopropulseur (moteur électrique) et la transmission.

Compte tenu des fortes interactions entre chacun des sous-systèmes en termes de réponse énergétique, d'encombrement, de poids et de coûts, la recherche d'un système de propulsion idéal ne peut pas être obtenue par la simple juxtaposition de composants optimaux. Pour répondre à cette problématique, nous allons modéliser un système de véhicule de taille moyenne propulsé par piles à combustible de type PEMFC et étudier ses différentes performances, après avoir déterminé la disposition des auxiliaires de la pile et classé les composants de la chaîne de traction électrique.

5. 1 Configurations des véhicules à piles «PEMFC»

Pour pouvoir excéder les atouts des futurs moteurs à combustion interne, le système de piles (PEMFC) assurant la propulsion du véhicule doit répondre à des exigences techniques et économiques très strictes concernant son accélération, sa vitesse maximum, sa capacité d'ascension de déclivité, son volume et poids, son autonomie et prix de revient...

Actuellement, les véhicules à piles de type PEMFC obligatoirement dotés d'une chaîne de traction électrique d'architecture hybride série [13], peuvent être classifiés en deux catégories [15]:

- Véhicules électriques à piles à combustible.
- Véhicules hybrides à piles à combustible.

Le premier type de véhicules utilise le système de piles PEMFC comme source d'énergie sans l'emploi de batteries. Dans une telle architecture dite « Full power » et dépourvue de dispositif de stockage d'énergie maximale, la pile à électrolyte solide est dimensionnée pour fournir la puissance de traction maximale et est alimentée en hydrogène soit directement soit via un processus de production de H₂ à bord du véhicule (Figure 5.1).

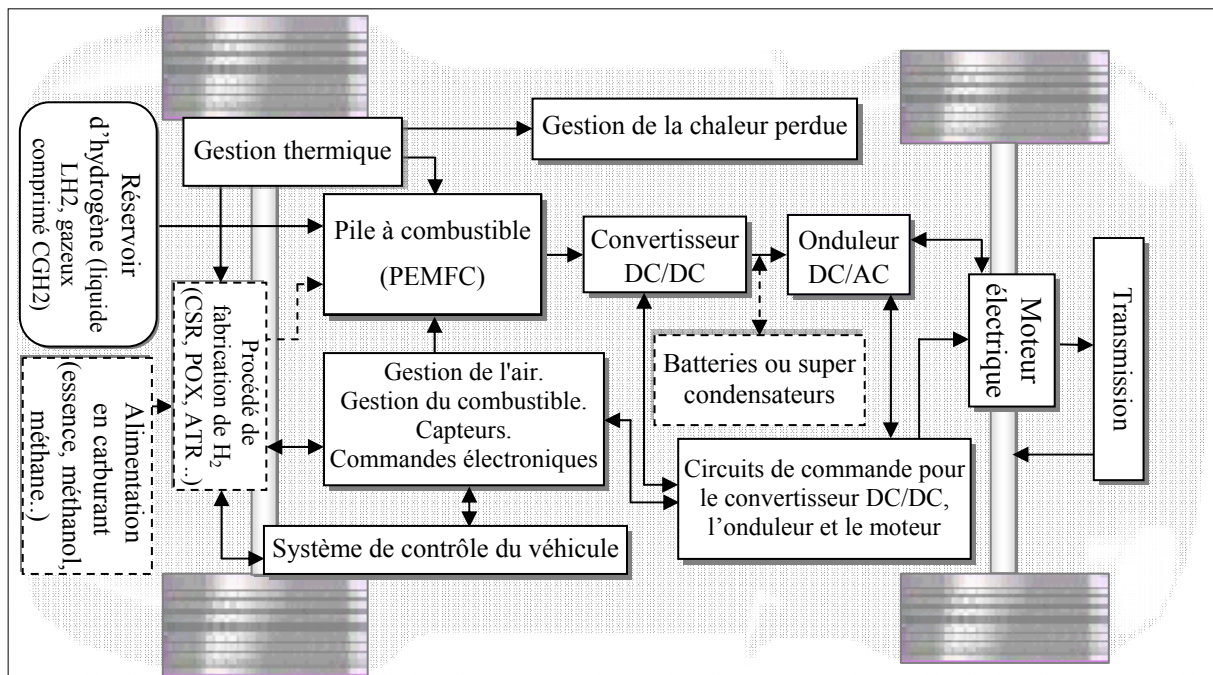


Figure 5. 1 : Schéma de base d'un véhicule typique à pile PEMFC avec ses différentes configurations possibles.

Un véhicule hybride à piles PEMFC dispose de deux réservoirs d'énergie (batteries ou de super condensateurs et l'hydrogène) en plus de deux convertisseurs d'énergie (le système piles à combustibles et les batteries) [22]. Dans cette configuration, la pile PEMFC fournit la puissance à l'état de charge permanent, alors que la batterie (ou Ultra-Capacitor) n'assure l'alimentation qu'au cours des phases transitoires (voir paragraphe [3. 2.6] du troisième chapitre). Ce qui offre les avantages suivants [13] :

1. Récupération de l'énergie cinétique du véhicule au freinage dans le système de stockage d'énergie;
2. Bonnes performances en transitoire de la chaîne de traction compensant ainsi la relative lenteur en transitoire du système pile à combustible;
3. Ajustement de la puissance de la pile à une valeur proche de la puissance moyenne nécessaire pour le profil de mission du véhicule ;
4. Réduction de la boucle de refroidissement de la pile, entre autres la taille de l'échangeur.

Une extension à cette gamme de véhicules hybrides peut être également conçue avec des piles PEMFC de faible puissance électrique, utilisées exclusivement pour charger à bord les batteries qui fournissent la pleine puissance au véhicule « peak power battery » [15].

Généralement, une base de comparaison entre les diverses catégories de véhicules peut s'obtenir en exprimant leurs puissances spécifiques sous forme de rapport : (puissance d'entraînement mécanique / masse totale du véhicule). Des valeurs spécifiques aux différents types de véhicules sont présentées dans le tableau 5.1.

Tableau 5. 1 : Valeurs typiques de la puissance spécifique de différentes catégories de véhicule, [22].

TYPE DE VEHICULE	MASSE : (kg)	PUISSANCE DEVELOPPEE : (kW)	PUISSANCE SPECIFIQUE DEVELOPPEE : (kW/1000kg)
Voiture	1000	75	75
Voiture	2000	350	175
Fourgon	3000	100	30
Bus	16 000	320	20
Camion	40 000	400	10

5.2 Cycles de conduite normalisés

Afin d'établir des rapports significatifs sur les coûts et performances des véhicules permettant en conséquence de leur identifier des créneaux potentiels, une base de comparaison doit être définie en examinant tous ces véhicules sous une variété de conditions de conduite sur des essais gouvernementaux normalisés. Ces états de conduite sont représentés quantitativement en « conduisant des cycles ».

De nombreux cycles de conduite sont actuellement développés dans plusieurs pays et se servent d'une séquence précise de profils de vitesse standardisés, avec des phases d'accélération, de freinage et de ralentissement, aussi bien que des périodes stationnaires bien définies «seconde par seconde», (Tableau 5.2).

Tableau 5. 2 : Principales propriétés de sept cycles de conduite normalisés, [14].

Caractéristiques Cycle	Durée (sec)	Distance (km)	Vitesse moyenne (km/h)	Vitesse maximale (km/h)	Décélération maximale (km/h.s)	Accélération maximale (km/h.s)
NYCC	600	1,93	11,42	44,58	-9,50	9,66
JAPAN 10/15	660	4,17	22,69	70,01	-	2,57
FUDS	1372	12,07	31,38	91,25	-5,31	5,31
FTP	1877	17,70	34,12	91,25	-5,31	5,31
US06	600	12,87	77,25	129,23	-11.10	13,68
HWY	765	16,42	77,57	96,40	-5,31	5,15
REP05	1400	32,19	82,88	129,23	-11,43	13,68

Un cycle de conduite simule le fonctionnement typique d'une voiture en conditions de circulation normales. Ceci fournit une base de comparaison pour des mesures standard de consommation de carburant et des gaz d'émissions comme il permet également, la détermination de la puissance instantanée requise par le véhicule et l'évaluation de ses régimes de fonctionnement (couple, tours/mn, etc.) en fonction des rendements caractéristiques du véhicule étant examiné [14].

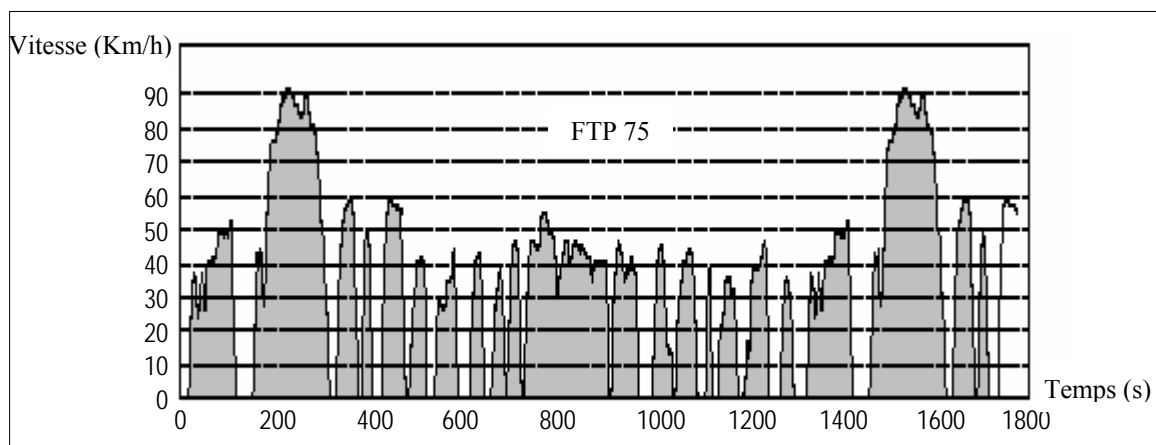


Figure 5. 2 : Profil de vitesse du procédé de test fédéral (FTP), [22].

Nous exposons sur les figures (5.2) et (5.3) deux cycles publiés dans la littérature et évoqués dans notre analyse. Le Federal Test Procedure (FTP75), New European Driving Cycle (NEDC) et le 10-15 Mode sont les plus bien connues de ces méthodes d'essai [22].

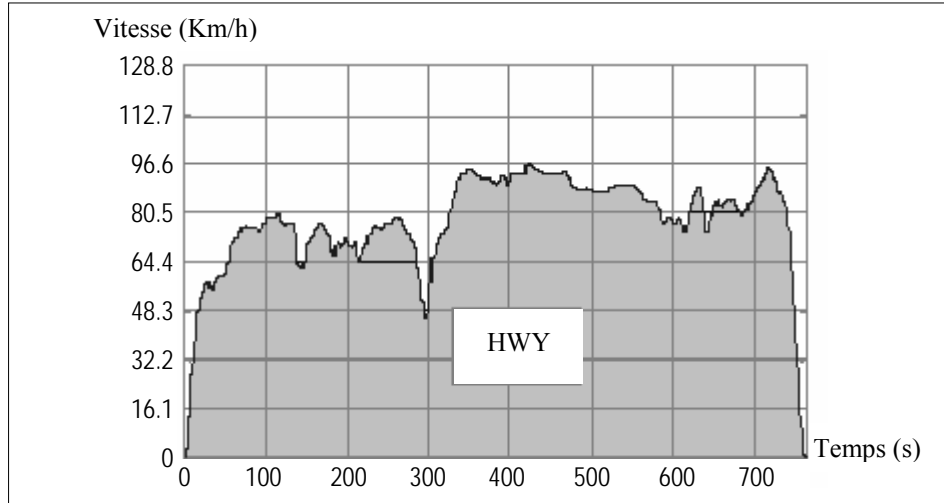


Figure 5.3 : Profil de vitesse du cycle de route (HWY), [14].

Conformément aux normes moyennes établies par la corporation d'économie de carburant (CAFE) (Corporate Average Fuel Economy), l'économie de carburant composée des cycles de conduite combinés FTP avec HWY est calculée en appliquant la formule suivante [7, 14]:

$$E_{veh\text{-}comb} = 1 / \left[(0,55 / E_{FTP}) + (0,45 / E_{HWY}) \right] \quad (5.1)$$

Où :

$E_{veh\text{-}comb}$: Autonomie totale du cycle combiné en (km/l).

E_{FTP} : Economie de carburant du cycle FTP, (km/l).

E_{HWY} : Economie de carburant mesurée dans le cycle HWY en (km/l).

5.3 Critères de performance pour les véhicules de taille moyenne

Les véhicules animés par piles à combustible sont prévus pour répondre à certains critères de performance afin de pouvoir concurrencer, avec succès, les véhicules de moteur à combustion interne conventionnels. À cet effet, l'association pour une nouvelle génération de véhicules PNGV a compilé un ensemble de caractéristiques pour les véhicules de taille moyenne.

Sous ces critères, un véhicule d'économie de carburant élevée doit disposer d'un [7, 15] :

- Système de pile à combustible (sans dispositif de puissance maximale) fournissant assez de puissance pour soutenir une vitesse de 24,58 m/s (55 mph) sur une pente de 6,5 %;
- Rendement du système de pile à combustible avec le dispositif de puissance maxi permettant l'accélération de 1,34 m/s² (3 mph/s) pour le dépassement à grande vitesse sur une route de niveau à 29,05 m/s (65 mph).

Les véhicules répondant à ces critères satisfont aisément les demandes de puissance des programmes de conduite : FUDS (Federal Urban Driving Schedule) et FHDS (Federal Highway Driving Schedule) qui, typiquement, ne requièrent que 10 à 20% de la puissance maximale [7].

5. 4 Modélisation d'un véhicule propulsé par piles à combustible

Dans cette section, nous développons un modèle mathématique pour le calcul de la puissance électrique d'un véhicule à piles «PEMFC» choisi et le dimensionnement des principaux composants de sa chaîne de traction.

À cet effet, nous décrivons la procédure par les étapes de calcul ci-dessous :

- ▶ Estimation de la masse totale (par un processus itératif) et classification d'une voiture conventionnelle équipée d'un système de piles PEMFC basé sur l'hydrogène.
- ▶ Calcul de la demande en puissance moyenne pour différents états d'entraînement dans un cycle normalisé adopté en considérant les critères du PNGV.
- ▶ Evaluation des efficacités du système propulsif, détermination de sa consommation de carburant, de la taille du réservoir et de(s) pile(s) pour satisfaire la puissance requise.

5. 4.1 Choix du type de véhicule

La demande en puissance d'un véhicule de base est fortement soumise à ses caractéristiques spécifiques qui en déterminent le poids et les propriétés aérodynamiques.

Dans notre cas, le système véhicule est une voiture de tourisme de taille moyenne qui maintient la même plateforme de base (voiture sans la chaîne de traction) et indépendamment de ses performances et de sa configuration d'origine, la structure du bâti reste la même, sauf pour les cas hybrides, où le poids augmente de 5 % à cause de la structure supplémentaire pour les batteries, etc.[14], les coefficients de traînée aérodynamique, de résistance de roulage, et la charge additionnelle sont supposés être identiques, seule la chaîne de traction qui diffère, (Tableau 5.3).

Tableau 5. 3 : Evolution des principales caractéristiques des véhicules de taille moyenne [14].

CARACTERISTIQUES :	2005	2010	2015	2020
<u>Masse du corps et du châssis</u>				
Corps en acier ultra léger (kg)	974	969	964	959
Corps en aluminium partiel (kg)	876	872	868	863
Corps en aluminium maximum (kg)	759	756	752	748
<u>Puissance spécifique</u>				
Moteur et génératrice (W/kg)	1225	1300	1350	1400
Unité de puissance M.C.I (essence) (W/kg)	325	330	335	340
Moteur et onduleur (W/kg)	960	985	1010	1035
Transmission (HEV série) (W/kg)	1625	1650	1675	1700
<u>Efficacité</u>				
Moteur et onduleur (%)	90	92	92	93
Génératrice (%)	95	95	95	96
Transmission (durant l'accélération) (%)	90	92	92	92
<u>Aérodynamique et roulage</u>				
Surface frontale A_v (m ²).	2.09	2.06	2.04	2.01
Coefficient de traînée C_d .	0.27	0.26	0.25	0.24
Coefficient de résistance de roulage f .	0.0080	0.0075	0.0070	0.0065

5. 4.2 Choix du cycle standard de conduite

Pour évaluer la puissance instantanée demandée P_{veh} essentielle à la modélisation du véhicule à piles PEMFC, nous adoptons le profil de vitesse relatif au nouveau cycle européen de conduite, NEDC (New European Driving Cycle) montré dans la figure 5.4,

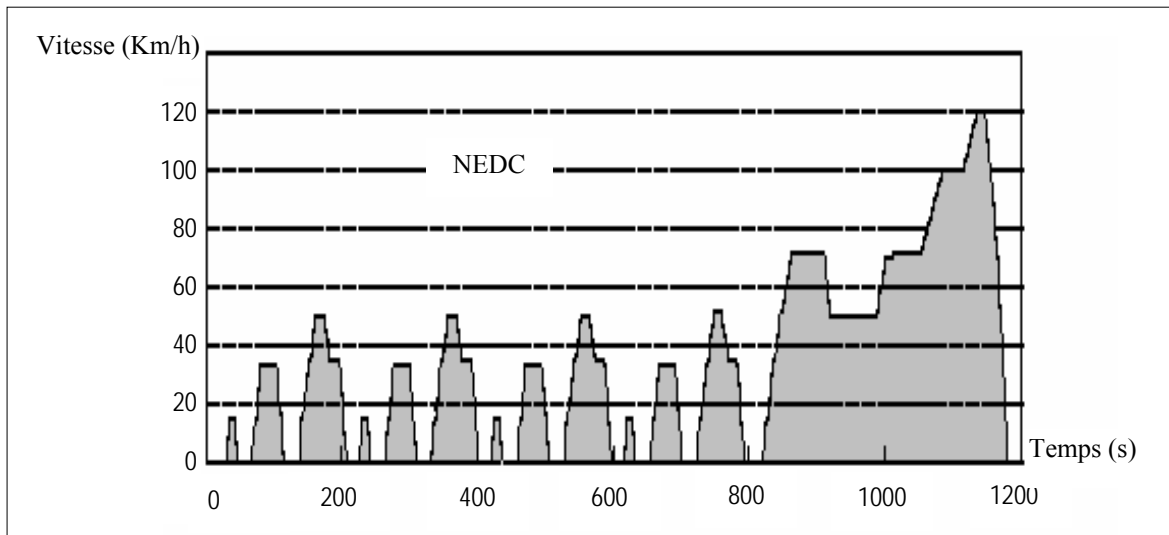


Figure 5. 4 : Profil de vitesse du nouveau cycle européen de conduite, NEDC (New European Driving Cycle), [22].

Le NEDC utilisé dans toute l'union européenne, n'est valide que pour des véhicules ayant une masse brute admissible inférieure à 3,5 tonnes. La séquence de vitesse est comme suit, [22] :

Le cycle a une durée de 1220 (s) et une longueur totale de 11 km. La vitesse moyenne du véhicule est approximativement 34 km.h^{-1} et sa vitesse maximum est de 120 km.h^{-1} . En fait, le NEDC est un test de démarrage à froid: avant l'essai, le véhicule doit être laissé au stand pour 12 à 36 h jusqu'à ce que le moteur ait gagné la température ambiante.

Les temps et les vitesses de décalage sont indiqués avec précision extrême pour les véhicules à transmission manuelle, puisque leur vitesse ne doit pas dévier au-delà de 2 km.h^{-1} des spécifications.

5. 4.3 Evaluation de la masse totale du véhicule à piles «PEMFC»

La masse d'inertie totale d'un véhicule de taille moyenne est exprimée comme suit, [14, 15, 22]:

$$M_v = m_{veh} + m_{charge} \quad (5.2)$$

Dans laquelle :

m_{veh} : Masse du véhicule, (kg) ;

m_{charge} : Masse de charge additionnelle comprenant le poids des passagers, de la cargaison et du carburant pour remplir 90% du volume du réservoir [22]. Sa valeur dépend de l'état de conduite dans le cycle considéré (pendant l'accélération sur route plane ou durant la montée d'une pente) [15], et est donnée en (kg) par la relation générale suivante [15, 22]:

$$m_{charge} = m_{passagers} + m_{cargaison} + m_{carburant} \quad (5.3)$$

La masse d'un véhicule m_{veh} se divise en trois groupes de masse distincts [14] :

1. Le corps, m_{co} .
2. Le châssis, m_{ch} .
3. La chaîne de traction, m_{ct} .

$$m_{veh} = m_{co} + m_{ch} + m_{ct} \quad (5.4)$$

Le corps et le châssis pour les véhicules conventionnels et ceux avec piles à combustible sont presque identiques, car ils ne dépendent que de la conception du véhicule [14]. Les valeurs de la résultante des masses de corps et châssis pour trois types de corps de matériaux différents sont énumérées dans le tableau (5.3).

La chaîne de traction d'un véhicule électrique à piles PEMFC comprend plusieurs composants : le système de piles PEMFC, le moteur électrique, l'onduleur avec convertisseur de tension, et la transmission ; chacun contribue avec sa propre masse qui peut s'exprimer par le rapport du taux de puissance à la puissance spécifique correspondante. Ainsi la masse de la chaîne de traction m_{ct} s'écrit [14, 22]:

$$\begin{aligned}
m_{ct} &= m_{syst} + m_{E-mot} + m_{cond} + m_{trans} \\
&= \frac{P_{syst}}{S_{syst}} + \frac{P_{E-mot}}{S_{E-mot}} + \frac{P_{cond}}{S_{cond}} + \frac{P_{trans}}{S_{trans}}
\end{aligned} \tag{5.5}$$

Avec :

m_{syst} , m_{E-mot} , m_{cond} et m_{trans} sont respectivement les masses en (kg) du système piles PEMFC, du moteur électrique, du convertisseur avec l'onduleur et du train d'entraînement ; P_{syst} , P_{E-mot} , P_{cond} et P_{trans} exprimées en (kW) et S_{syst} , S_{E-mot} , S_{cond} et S_{trans} données en (kW/kg) sont leurs taux de puissance et puissances spécifiques respectives.

En évaluant la masse m_{syst} du système piles, il faut considérer le poids additif du procédé de production de H_2 à bord. Comparé aux véhicules à hydrogène pur, ce supplément s'estime à 10% pour le vaporeformeur (méthanol) et de 19% pour le procédé POX (essence) [7].

Notons ici que la masse du système de stockage d'énergie électrique (batteries ou super condensateurs) $m_{batt} = \frac{P_{batt}}{S_{batt}}$ n'apparaît pas dans l'équation (5.5) car, la chaîne de traction du type de véhicule adopté n'inclut pas ce genre de dispositif.

5.4.4 Consommation de carburant et résistance de conduite

La consommation de carburant d'un véhicule par distance parcourue ($g \cdot m^{-1}$) peut être calculée selon la formule suivante [22] :

$$B_{carb} = \frac{\int \frac{b_{carb}}{\eta_{trans}} \left[\left(M_v \cdot f \cdot g \cdot \cos(\theta) + \frac{\rho}{2} \cdot C_d \cdot A_v \cdot v^2 \right) + M_v \left(\frac{dv}{dt} + g \cdot \sin(\theta) \right) + B_r \right] \cdot v \cdot dt}{\int v \cdot dt} \tag{5.6}$$

Dans laquelle :

b_{carb} : Consommation spécifique de carburant ($g \cdot kWh^{-1}$) ;

g : Accélération de la pesanteur = $9,8 \text{ m/s}^2$;

ρ : Densité d'air égale à $1,29 \text{ kg/m}^3$ aux conditions standard (PTS) [15];

v : Vitesse du véhicule (m/s) ;

B_r : Résistance de freinage (N).

Sur la base de cette définition, les trois principaux éléments influençant la consommation de carburant peuvent être catégorisés comme facteurs concernant :

- Le moteur ;
- Le train d'entraînement ;
- La résistance de conduite.

Dans le cas des véhicules dotés de piles à combustible, la consommation spécifique de carburant b_{carb} correspond au facteur de rendement global comprenant le système de piles à combustible, le convertisseur avec l'onduleur et le moteur électrique, exprimé en g.kWh^{-1} .

En ce qui concerne le train d'entraînement, seul le rendement de transmission doit être pris en considération. Les pertes de transmission s'élèvent à environ 1–2% par étage de vitesse [22].

La résistance de conduite a une forte influence sur la consommation de carburant et les facteurs de contribution sont : la résistance de roulement, la traînée d'air, résistance d'accélération, résistance de rampe ascendante et la résistance de freinage.

La résistance extérieure globale de conduite est déterminée par la somme des résistances de roulement, d'air et de la déclivité du terrain selon le schéma 5.5.

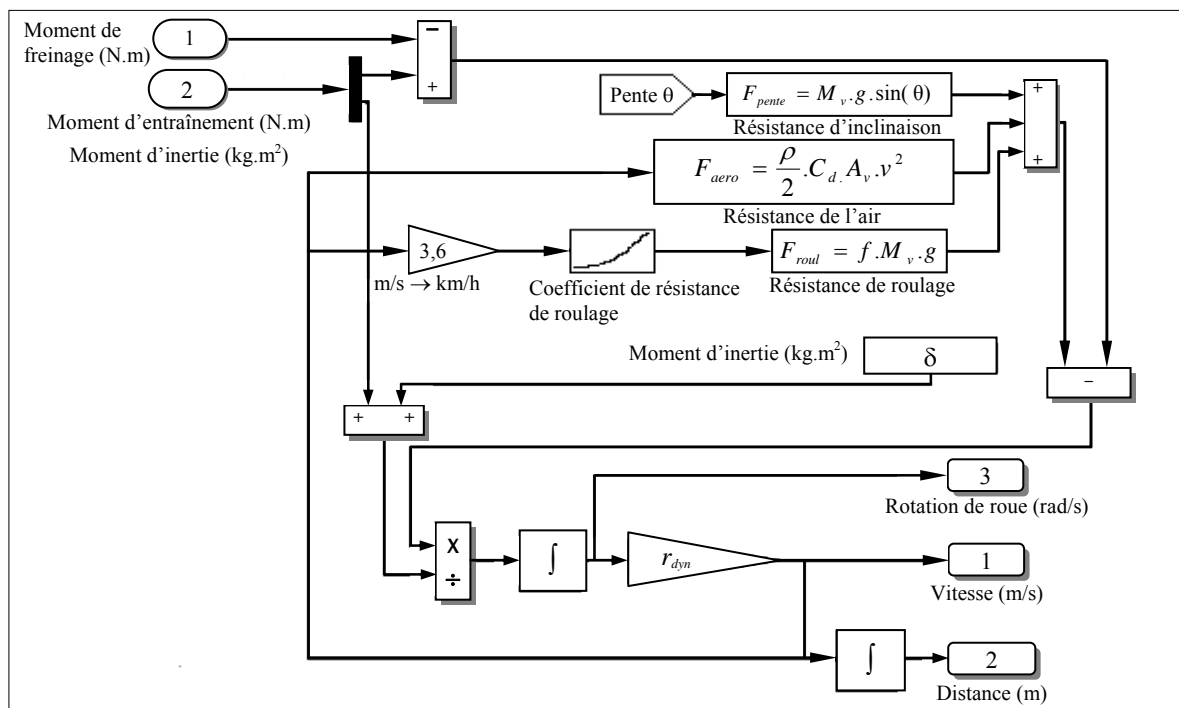


Figure 5.5 : Diagramme d'un modèle de véhicule avec les résistances de conduite.

La résistance de roulage résulte de la perte au travail de fléchissement entre le pneu et la route et est définis par [22] :

$$F_{roul} = f.M_v.g \quad (5.7)$$

Le coefficient de résistance de roulage f est inversement proportionnel au rayon du pneu et directement proportionnel à sa distorsion. Il s'accroît avec l'augmentation de la charge, l'accroissement de vitesse et la réduction de pression du pneu. Ses valeurs sont indiquées dans le tableau 5.3

La résistance de l'air est fonction de sa densité ρ , de sa vitesse d'écoulement v , de la surface frontale du véhicule A_v et du coefficient de traînée aérodynamique C_d . Elle s'écrit comme suit [22] :

$$F_{aero} = \frac{\rho}{2}.C_d.A_v.v^2 \quad (5.8)$$

Grâce au développement intensif récent dans l'optimisation des carrosseries, les véhicules carénés ont un coefficient de traînée variant de 0,25 à 0,4 et une aire frontale comprise, en général, entre 1,5 et 2,5 m² [22], (voir tableau 5.3).

5. 4.5 Puissance totale exigée par le véhicule

La puissance totale P_{veh} requise par le système de propulsion d'un véhicule doit être suffisante pour assurer l'accélération du véhicule, tout en alimentant ses différents accessoires, et surmonter les pertes aérodynamiques de traînée, la résistance de roulage, et le changement d'altitude. Ces termes de puissance sont regroupés dans l'expression suivante [7, 15]:

$$P_{veh} = P_{roue} + P_{aux-veh} \quad (5.9)$$

Dans laquelle :

$P_{aux-veh}$: Puissance électrique nécessaire pour les auxiliaires du véhicule tels que les lumières, les essuie-glaces, la radio, le climatiseur et l'allume cigarette etc., (W) ;

P_{roue} : Puissance propulsive demandée à la roue du véhicule et calculée pour différents états de conduite dans le parcours choisi (vitesse maximum sur un plan, montée). Elle-même exprimée par la somme de deux termes que nous examinerons par la suite, [14] :

$$P_{roue} = P_{accel} + P_{pente} \quad (5.10)$$

Avec :

P_{accel} : Puissance d'accélération du véhicule en (W);

P_{pente} : Puissance d'ascension de pente en (W).

5.4.5.1 Puissance d'accélération

Un véhicule de taille moyenne ayant une masse d'inertie M_v et qui accélère sur une route plate ($\theta = 0^\circ$) exigerait une puissance P_{accel} indiquée par l'équation suivante [14] :

$$P_{accel} = M_v \cdot v \cdot \frac{dv}{dt} + \frac{1}{2} \cdot \rho \cdot A_v \cdot C_d \cdot v^3 + M_v \cdot g \cdot f \cdot v \quad (5.11)$$

L'intégration de cette expression entre $t = 0$ et $t = t_{max}$, en supposant que la relation entre la vitesse du véhicule et le temps est rapprochée par une fonction hyperbolique dont l'exposant varie de 0,5 à 0,66 pour $v_{max}=29,5$ m/s, simplifie l'équation (5.11) ainsi [14] :

$$P_{accel} = a_{accel} \cdot M_v + b_{accel} = a_{accel} \cdot (m_{veh} + m_{chgacl}) + b_{accel} \quad (5.12)$$

Dans laquelle :

a_{accel} : Fonction des caractéristiques d'accélération et de résistance de roulage;

b_{accel} : Fonction des caractéristiques de la résistance aérodynamiques;

m_{chgacl} : Masse de la charge du véhicule durant son accélération (=136 kg, [14]).

5.4.5.2 Puissance d'ascension de pente

La puissance, P_{pente} , requise pour négocier une élévation de niveau représentée par un angle θ à une vitesse constante v_g pourrait être écrite comme suit [14] :

$$P_{pente} = \frac{1}{2} \cdot \rho \cdot A_v \cdot C_d \cdot v_g^3 + M_v \cdot g \cdot v_g \cdot \sin(\theta) + M_v \cdot g \cdot v_g \cdot f \cdot \cos(\theta) \quad (5.13)$$

En suivant la même procédure décrite précédemment dans le paragraphe [5. 4.5.1], nous obtenons l'expression suivante [14] :

$$P_{pente} = c_{pente} \cdot M_v + d_{pente} = c_{pente} \cdot (m_{veh} + m_{chgpen}) + d_{pente} \quad (5.14)$$

Où :

c_{pente} : Fonction des caractéristiques des résistances de roulage et d'inclinaison;

d_{pente} : Puissance requise pour surmonter la résistance de l'air;

m_{chgpen} : Masse de la charge du véhicule durant la montée d'une pente (= 499 kg, [14]).

5.4.6 Rendement global du système de propulsion à piles à combustible

Le résultat de fixation des composants et des modes opératoires du système « véhicule à piles PEMFC » constitue la définition de sa structure fondamentale permettant de déterminer la disposition des sous-systèmes avec leurs éléments spécifiques.

Basé sur les conditions du profil de conduite décrit dans la section [5. 4.2] de ce chapitre, la disposition réelle du système et de ses divers composants peut maintenant avoir lieu (voir schéma 5.6).

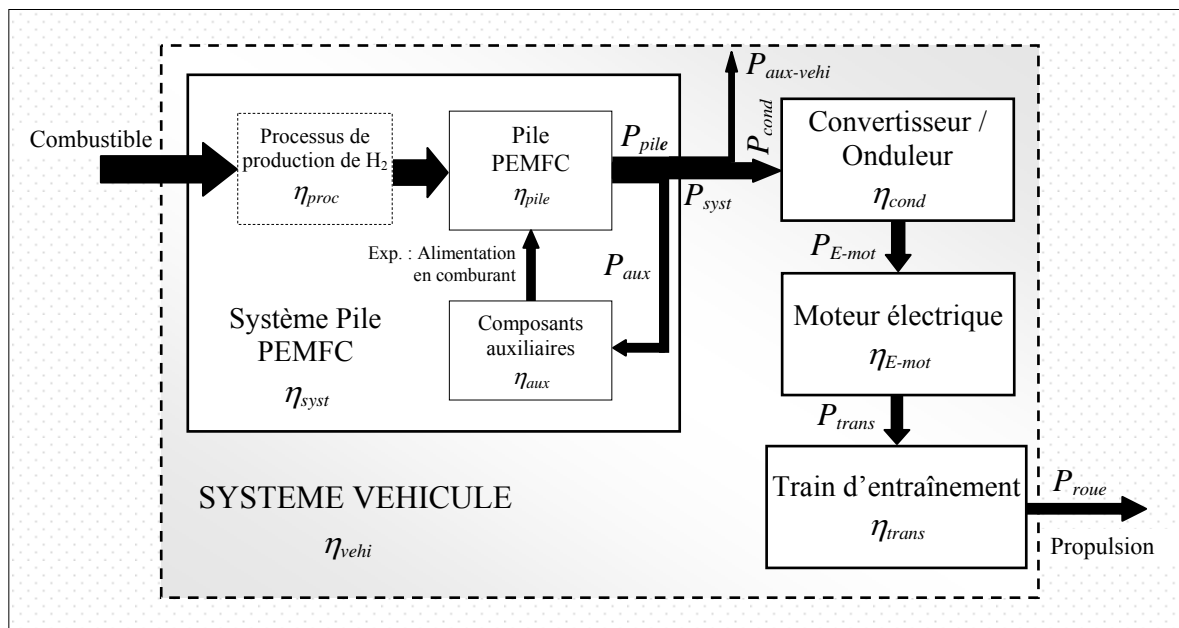


Figure 5.6 : Système véhicule propulsé par pile à combustible PEMFC avec les efficacités de ses divers composants.

D'abord la puissance propulsive exigée P_{roue} nécessaire à la roue doit être indiquée pour différents états d'entraînement (vitesse maximum sur route plate, négociation d'une rampe...), où chaque composant a sa propre efficacité de conversion de puissance et quelques pertes implicites dans ses organes électriques ou mécaniques tels que les roulements...

Par conséquent, en tenant compte des efficacités effectives: du moteur électrique η_{E-mot} , du convertisseur de tension avec l'onduleur η_{cond} , ainsi que la transmission η_{trans} , la puissance électrique nette, devant être assurée par le système de piles à combustible, résulte :

$$P_{syst} = \frac{P_{roue}}{\eta_{cond} \cdot \eta_{E-mot} \cdot \eta_{trans}} + P_{aux-vehi} \quad (5.15)$$

Le rendement global de la conversion d'énergie thermique du combustible en puissance utile de conduite, dans le système complet de propulsion du véhicule, s'écrit comme suit [22]:

$$\begin{aligned} \eta_{vehi} &= \eta_{trans} \cdot \eta_{E-mot} \cdot \eta_{cond} \cdot \eta_{syst} \\ &= \eta_{trans} \cdot \eta_{E-mot} \cdot \eta_{cond} \cdot \eta_{proc} \cdot U_{H_2} \cdot \eta_{pile} \cdot \eta_{aux} \end{aligned} \quad (5.16)$$

Pour obtenir un rendement total élevé du véhicule, chaque terme de l'équation d'efficacité (5.16) doit être aussi grand que possible. Cependant, quelques principes fondamentaux sont à considérer:

- Les efficacités des différentes étapes du processus ne sont pas indépendantes mais s'affectent en partie mutuellement (par exemple, la consommation d'énergie parasite et ainsi η_{aux} est habituellement plus petite avec un système d'alimentation en comburant à basse pression qu'avec un système à haute pression, d'autre part le rendement de la pile η_{pile} diminue avec une pression de fonctionnement décroissante et vice versa).
- Les moteurs électriques avec convertisseurs de tension de rendements élevés sont la plupart du temps plus lourds, ce qui affecte négativement la puissance de traction requise pour une certaine performance d'entraînement.

En outre, un rendement de pile à combustible aussi élevé est toujours nécessaire pour l'équilibre hydrique pouvant, dans ce cas-ci, être facilement résolue avec des températures de condensation élevées et, la chaleur perdue serait épuisée par un refroidisseur plus compact.

5. 4.7 Calcul des dimensions de la pile «PEMFC»

Compte tenu des données calculées, auparavant, de l'efficacité η_{aux} des périphériques auxiliaires du système pile à combustible (voir paragraphe [4. 2.10]) et après avoir effectué un choix optimal du point de fonctionnement sur la courbe caractéristique de la cellule PEM, la taille des piles peut être déterminée comme suit :

La surface électroactive de la cellule s'obtient, en fonction de la puissance de la pile calculée, par la relation suivante :

$$A_{cell} = \frac{P_{pile}}{V_{CELLactuel} \cdot N_{pile} \cdot N_{cell/pile} \cdot i} \quad (5 . 17)$$

Et le secteur total requis de cellule par pile devient [22] :

$$A_{Celltot} = \frac{A_{cell}}{\alpha_{active}} \quad (5 . 18)$$

Avec:

α_{active} : Rapport du secteur actif à la surface totale dans la plaque bipolaire de la cellule.

Les zones non actives de la surface des cellules sont principalement celles d'admissions et de jointure, où les valeurs typiques de α_{active} sont comprises entre 80 et 86 %, [22].

La répartition de la surface totale $A_{CELLtot}$, en termes de dimensions de hauteur h_{pile} et de largeur de la pile w_{pile} , peut être spécifiée dans des limites largement libres et basée sur, par exemple, les conditions d'installation dans le véhicule :

$$A_{Celltot} = h_{pile} \cdot w_{pile} \quad (5 . 19)$$

La longueur de pile PEMFC l_{pile} résulte du nombre de ses cellules $N_{cell/pile}$, de leur épaisseur d_{cell} , aussi bien que de l'épaisseur des deux plaques d'extrémité de la pile $d_{plaques-ext}$:

$$l_{pile} = N_{cell/pile} \cdot d_{cell} + 2 \cdot d_{plaques-ext} \quad (5 . 20)$$

Ainsi, le volume global de la pile v_{pile} devient :

$$v_{pile} = (N_{cell/pile} \cdot d_{cell} + 2 \cdot d_{plaques-ext}) \cdot h_{pile} \cdot w_{pile} \quad (5 . 21)$$

Dès lors, le principal composant du système pile à combustible de type PEMFC est fixé.

5. 4.8 Calcul du débit de carburant consommé

L'expression du débit de combustible consommé par le véhicule en (kg/s) découle de la combinaison des équations (4. 46), (5. 15) et (5. 16) et s'écrit ainsi :

$$\dot{m}_{combust} = \frac{P_{roue} + P_{aux-vehi} \cdot (\eta_{cond} \cdot \eta_{E-mot} \cdot \eta_{trans})}{\eta_{vehi} \cdot PCS_{combust}} \quad (5. 22)$$

Pour un véhicule alimenté directement en hydrogène pur, l'indice « *combust* » dans l'équation ci-dessus devient « H_2 ». Par suite, η_{proc} dans (4. 46) égalera l'unité et le débit d'hydrogène nécessaire au véhicule prend la forme suivante :

$$\dot{m}_{H_2admis} = \frac{1}{PCS_{H_2}} \left[\frac{P_{roue}}{\eta_{vehi}} + \frac{P_{aux-vehi.}}{\eta_{syst}} \right] \quad (5. 23)$$

De ce fait, une basse consommation de carburant requiert un grand rendement global du système véhicule, une efficacité de pile PEMFC élevée, ainsi que de faibles puissances : propulsive demandée à la roue, et électrique pour les auxiliaires du véhicule.

5. 4.9 Détermination de la taille du réservoir de carburant

Si le gaz d'hydrogène est stocké sous pression dans un cylindre à bord d'un véhicule ayant la vitesse moyenne v_{moy} sur le cycle de conduite, la masse brute en (kg) de ce réservoir est donnée par l'expression :

$$m_{reserv H_2} = \frac{\dot{m}_{H_2admis}}{\beta_{H_2 comp}} \left[\frac{L_{vehi}}{v_{moy}} \right] \quad (5. 24)$$

Avec :

$\beta_{H_2 comp}$: Rapport de la masse d'hydrogène à la masse du réservoir rempli ($kg_{H_2}/kg_{cylindre}$).

L_{vehi} : Gamme de véhicule ou distance parcourue avec une réserve de carburant (m).

Le volume nécessaire de gaz d'hydrogène comprimé sous pression $P_{H_2,comp}$ à température standard $T_{H_2,comp}^0$ est obtenu en appliquant l'équation d'état du viriel simplifiée ci-dessous [15] :

$$v_{H_2,comp} = n_{H_2} \left[\frac{R \cdot T_{H_2,comp}^0}{P_{H_2,comp}} + B^0 \right] \quad (5.25)$$

Dans laquelle :

n_{H_2} : Nombre de moles d'hydrogène donné par l'équation d'état d'un gaz parfait (moles).

R : Constante universelle des gaz parfaits (8,3145 J/K.mole).

B^0 : Premier coefficient du viriel égal à $15,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3/\text{mole}$, à $T_{H_2,comp}^0 = 298,15\text{K}$ [15].

D'une manière similaire, la détermination de la taille des autres systèmes et composants secondaires tels que: le réacteur de carburant, l'alimentation en air, récupération de l'eau y compris le stockage et le dosage jusqu' au système de canalisation, unités de commande avec instruments de mesures et raccordements électriques, peut être effectuée.

Les données et dimensions du système et des éléments calculés doivent être comparés avec l'espace libre disponible pour la motorisation électrique. Par conséquent, l'arrangement des différents composants conçus doit s'effectuer d'une manière fonctionnelle et appropriée dans le véhicule.

Comme déjà mentionné, toutes les données pour le système comprenant le poids, taille, dimensions et volume disponible..., s'affectent mutuellement. Il suit que souvent, dans la première étape du processus de disposition, aucune solution satisfaisante ne pourrait être obtenue, car certaines données initiales requises constituent en même temps les résultats du calcul complet. Ainsi, le processus devient itératif, jusqu'à ce qu'une solution optimisée pour l'application respective puisse finalement être trouvée.

Dans le chapitre suivant, nous montrons les divers résultats numériques issus d'un code de calcul que nous avons développé pour modéliser le système véhicule à piles cité plus haut et, étudier ses performances afin d'en déduire les dimensions de sa pile PEMFC, la taille du réservoir et la consommation du combustible...

CHAPITRE 6

CALCUL NUMERIQUE; RESULTATS ET INTERPRETATIONS

Dans ce chapitre, nous allons successivement décrire la procédure de programmation traitant de la modélisation d'une cellule de pile PEMFC avec celle d'un véhicule animé par ce type de générateur et discuter l'ensemble des résultats exposés issus du calcul numérique.

En se basant sur l'étude théorique établie auparavant pour formuler les modèles mathématiques, nous avons mis au point deux programmes complémentaires sous FORTRAN 32 : « PEMFC.for » et « VEHICULE.for ». Le premier destiné à la simulation d'une cellule unitaire de pile PEMFC, a pour objectif majeur de fixer un point de fonctionnement optimum pour cette dernière après avoir tracé sa courbe caractéristique et analysé l'impact de certains paramètres opératoires sur ses performances nominales à savoir : tension, puissance, efficacité et consommation de combustible.

Le deuxième code est dédié à la modélisation d'un véhicule de taille moyenne à PAC d'architecture « Full Power » et sert principalement à l'évaluation de ses performances routières (puissance développée, consommation spécifique de carburant, rendement global...) ainsi qu'au dimensionnement des principaux éléments de sa chaîne de motorisation électrique. Il s'agit notamment de la pile PEMFC et du réservoir de carburant.

Pour ne pas alourdir le texte, les organigrammes et certains résultats graphiques et numériques correspondant à ces deux outils de simulation, sont présentés, respectivement, dans les annexes B, C et D et leurs données sont recueillies de plusieurs sources et parfois complétées avec le jugement technique nécessaire.

Dans cette étude préliminaire, notre but est de définir les performances nominales des deux systèmes (pile PEMFC et véhicule à PAC). De ce fait, nous nous sommes contentés d'utiliser des « modèles de système » relativement simples en employant une approche globale pour quelques organes (moteur électrique, onduleur, transmission..) assimilés dans ce cas à des « boîtes noires » et modélisés par des grandeurs caractéristiques (rendements, puissances spécifiques) en évitant d'introduire trop de détails relatifs à leur fonctionnement qui compliqueraient sensiblement l'étude.

6. 1 Procédure de programmation

6. 1.1 Structure du programme « PEMFC.FOR »

Le programme «PEMFC.for» comprend deux fichiers de données : (DONNE.dat et DONVEHI.dat). Le premier intègre des variables que nous énumérons comme suit :

- a . Pressions partielles et stœchiométries des gaz réactifs aux électrodes.
- b . Température de fonctionnement de la cellule.
- c . Caractéristiques de la membrane (épaisseur, humidité).
- d . Données relatives au carburant employé (type, pouvoir calorifique supérieur, rendement de conversion en hydrogène...).

Tandis que le second fichier rassemble les valeurs numériques des puissances du système PAC générées par le programme « VEHICULE.for » prévu pour modéliser le véhicule. En fait, la liaison entre les deux codes de calcul est assurée par ce même fichier.

Dans le fichier de résultats « RESULTS.dat », après validation du choix des paramètres ci-dessus, l'exécution de ce programme fait apparaître :

- Le potentiel idéal de la cellule en circuit ouvert en fonction de sa température et des pressions partielles des réactants.
- Les différentes polarisations (d'activation, ohmique et de concentration) affectant le potentiel de la cellule connectée à la charge.

Comme il permet aussi d'afficher en fonction de la densité de courant débité par la cellule et imposée par la charge :

- ▶ Le potentiel réel (courbe caractéristique de la cellule PEMFC).
- ▶ La densité de la puissance électrique délivrée par la cellule.
- ▶ Les débits massiques (utilisés et admis) des gaz réactifs.
- ▶ Le rendement thermique réel de la cellule élémentaire.

En considérant les exigences techniques de la pile et plus particulièrement ceux liées à :

1. L'architecture du montage électrique des cellules (parallèle, serie, cascade).
2. Le point d'opération nominal choisi sur la courbe de polarisation de la cellule.
3. Les spécifications électriques imposées par le type de(s) moteur(s) dotant la chaîne de

traction et par les diverses sollicitations de l'environnement de conduite.

Notre programme est également en mesure de calculer :

- L'aire de la surface électroactive et nombre total des cellules de(s) pile(s).
- La tension réelle en fonction du courant électrique de la pile (courbe caractéristique).
- La puissance électrique fournie en fonction du courant de décharge.
- Le rendement de la pile affecté par les pertes de l'assemblage des cellules élémentaires.
- L'efficacité globale du système pile incluant tous les auxiliaires y compris le procédé embarqué pour fabrication de H₂ à partir d'autres carburants hormis l'hydrogène pur.
- Les débits massiques totaux des réactifs admis (air, hydrogène pur, essence ou méthanol) en fonction de l'intensité du courant tiré de la pile.

6. 1.2 Structure du programme « VEHICULE.FOR »

Les paramètres et variables du modèle sont sauvegardés dans un fichier « DATA.dat » et regroupés en plusieurs blocs concernant les:

1. Données du cycle de conduite choisi : durée totale, profil de vitesse, déclivité du terrain..
2. Grandeurs spécifiques du véhicule : masse du châssis et de la charge additionnelle, surface frontale, coefficients de résistance de roulage et aérodynamique, puissance auxiliaire...
3. Organes de la motorisation (système PAC, onduleur et convertisseur, moteur électrique, train d'entraînement) : rendements, puissances spécifiques...
4. Critères de performance du PNGV : accélération maximale, vitesse moyenne, pente...
5. Propriétés physicochimiques et thermodynamiques des réactants (air, hydrogène) : pouvoir calorifique, masses volumiques, pression, température...
6. Caractéristiques de la pile : nombre total, épaisseur et surface active des cellules,...

Dans un premier temps, une linéarisation du profil de vitesse du véhicule issue d'une cartographie du cycle NEDC est effectuée, ce qui permet de déterminer les valeurs instantanées de son accélération et sa vitesse durant tout le parcours.

Une étape ultérieure, est l'estimation de la masse d'inertie du véhicule, dans la gamme des tailles moyennes, pour laquelle les calculs durant toute la période du cycle peuvent avoir lieu et, dont les résultats seront enregistrés dans un fichier « RESU.dat » comme suit :

- Composantes de puissance propulsive demandée à la roue pour vaincre les différentes résistances de conduite : de roulage, de traînée aérodynamique, d'accélération et d'altitude.
- Valeurs moyenne et maximum de la puissance de traction.
- Puissance (mécanique ou électrique) requise pour chaque élément de la chaîne de traction en l'occurrence celle du système pile PEMFC qui sera affichée par pas de seconde dans le fichier « DONVEHI.dat » déjà évoqué.

En tenant compte des valeurs moyenne et maximum de la puissance propulsive compilées par le PNGV, nous pouvons effectuer les calculs suivants :

- a . Dimensionnement de la pile PEMFC pour la puissance de traction maximale (surface totale nécessaire, volume global...).
- b . Dimensionnement du réservoir de carburant pour la puissance propulsive moyenne avec une gamme de véhicule prédéfinie (masse brute, volume total,...).
- c . Performances du véhicule à PAC (rendement global, puissance spécifique développée, autonomie, consommation spécifique de carburant,...).

Cette étape de dimensionnement permet de calculer une nouvelle valeur pour la masse entière du véhicule qui sera automatiquement comparée à sa première estimation dans un intervalle selon le désir de l'utilisateur. Un écart significatif arrête les calculs et réclame une nouvelle estimation, ainsi un processus itératif est lancé jusqu'à l'obtention d'une valeur satisfaisante.

Après avoir chargé « DONVEHI.dat », l'exécution du programme « PEMFC.for » génère le long du parcours choisi, les valeurs temporelles ci-dessous :

1. Réponses électriques de la pile PEMFC et de son système (intensité de courant, tension, puissance).
2. Performances du véhicule avec le système PAC (rendements, débits de carburant et comburant usés).

L'intégration sur tout le cycle de conduite de ce dernier résultat rend possible la détermination des masses et volumes totaux des réactants consommés, essentiels pour la définition des performances de stockage de carburant via le programme « VEHICULE.for ».

6. 2 Résultats graphiques des simulations

6. 2.1 Résultats du modèle de cellule de pile à combustible PEMFC

6. 2.1.1 Courbe caractéristique et irréversibilités de la cellule PEMFC

À des conditions opératoires bien définies, nous présentons dans la figure 6.1, la courbe caractéristique d'une cellule élémentaire de pile PEMFC, sur laquelle nous constatons la chute notable du potentiel réel de la cellule avec l'accroissement de la densité du courant débité, où il passe de la valeur de 0,96V à courant nul jusqu'à 0,1V à la densité de 1,7A/cm².

Cette baisse de tension qui se manifeste au sein de la cellule est essentiellement due au flux d'électrons traversant les deux électrodes pour alimenter la charge qui lui est appliquée.

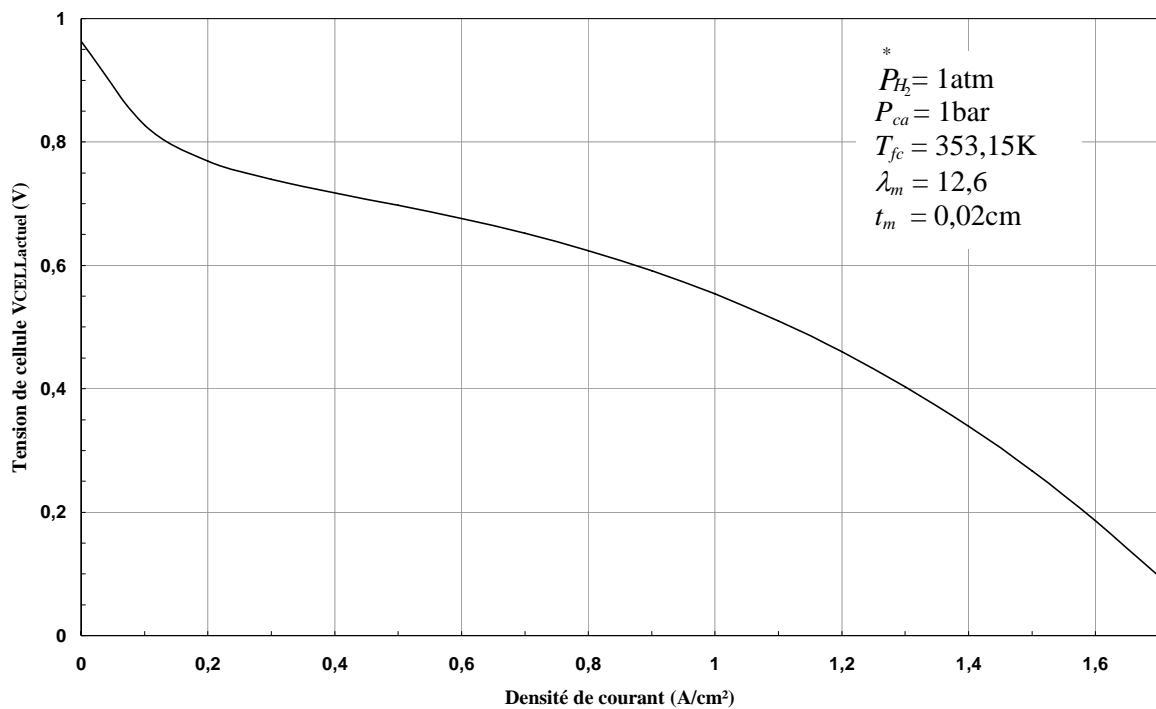


Figure 6. 1 : Variation de la tension de cellule en fonction de la densité du courant de décharge : (Courbe de polarisation de la cellule PEMFC).

La figure ci-dessous illustre les différentes pertes affectant le potentiel réel de la cellule, où nous pouvons remarquer que sa tension réversible en circuit ouvert et aux conditions standard évaluée à 1,229 V, diminue jusqu'à la valeur de 1,164 V sous l'effet de la température de fonctionnement de la cellule 353,15 K (80°C). Ceci s'explique par le fait que le potentiel de la cellule est proportionnel à la variation d'énergie libre de formation de Gibbs par mole Δg_f dans l'équation (4. 8), et que Δg_f décroît avec l'augmentation de la température pour laquelle l'eau serait produite sous forme gazeuse.

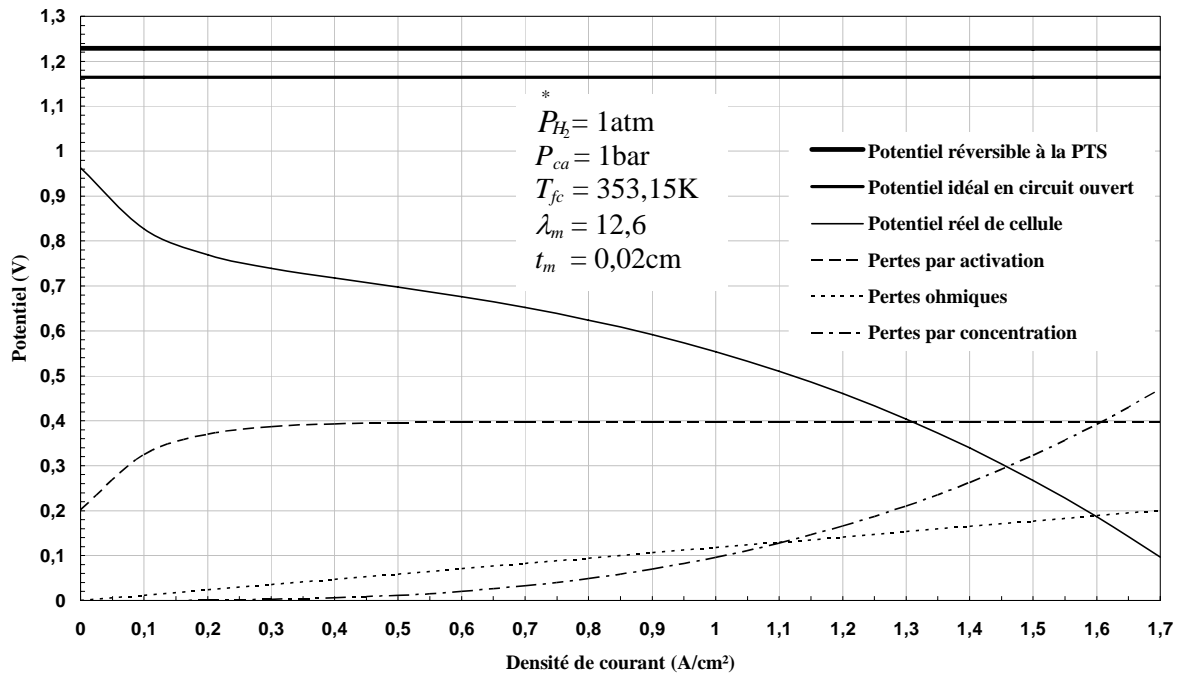


Figure 6. 2 : Contributions relatives des diverses polarisations au potentiel de la cellule.

D'autre part, la connexion de cette cellule à une charge électrique fait surgir des irréversibilités sur trois intervalles distincts de sa densité de courant:

1. De 0 A/cm^2 à $0,4 \text{ A/cm}^2$:

Le début d'alimentation de la charge est caractérisé par la polarisation d'activation qui fait diminuer le potentiel de la cellule de $0,2 \text{ V}$ à $0,4 \text{ V}$ et maintient cette valeur jusqu'à la densité de courant maximale. Cette chute de tension de taux moyen égal à $28,8 \%$ est nécessaire pour surmonter le ralentissement de la cinétique de la réaction électrochimique des réactants sur la surface catalytique des deux électrodes de la cellule.

2. De $0,4 \text{ A/cm}^2$ à $1,1 \text{ A/cm}^2$:

Dans cette région, la tension de la cellule évolue presque linéairement avec sa densité de courant, et les polarisations ohmiques contribuent à une perte s'étendant de $0,06 \text{ V}$ à $0,13 \text{ V}$ ce qui correspond à une moyenne de $8,1\%$ causée par la résistance ionique dans l'électrolyte et la résistance électrique dans les électrodes et plaques bipolaires...

3. De $1,1 \text{ A/cm}^2$ à $1,7 \text{ A/cm}^2$:

Les pertes par concentration deviennent plus importantes avec l'augmentation de la demande électrique ce qui rend la cellule incapable de maintenir les concentrations des ses réactifs dont le transport vers le site de la réaction devient plus lent produisant ainsi une chute de tension brusque allant de $0,17 \text{ V}$ à $0,47 \text{ V}$, avec un taux de perte moyen estimé à $26,13 \%$.

6. 2.1.2 Influence de certains paramètres sur le potentiel de la cellule PEMFC

6. 2.1.2.1 Impacts de la pression des gaz réactifs

La figure 6. 3, montre l'influence de la variation de la pression partielle de l'hydrogène à l'anode de la cellule sur sa tension effective. Nous constatons que le potentiel de la cellule est peu sensible à cette variation car, un quadruplement de la pression P_{H_2} ne fait accroître cette tension que de pratiquement 0,021V, soit une moyenne de 4,83%, ceci est dû au fait que P_{H_2} intervient uniquement dans l'expression générale du potentiel idéal de la cellule (équation (4. 18)), et cela sous une forme logarithmique affectée par un coefficient de l'ordre de 10^{-2} .

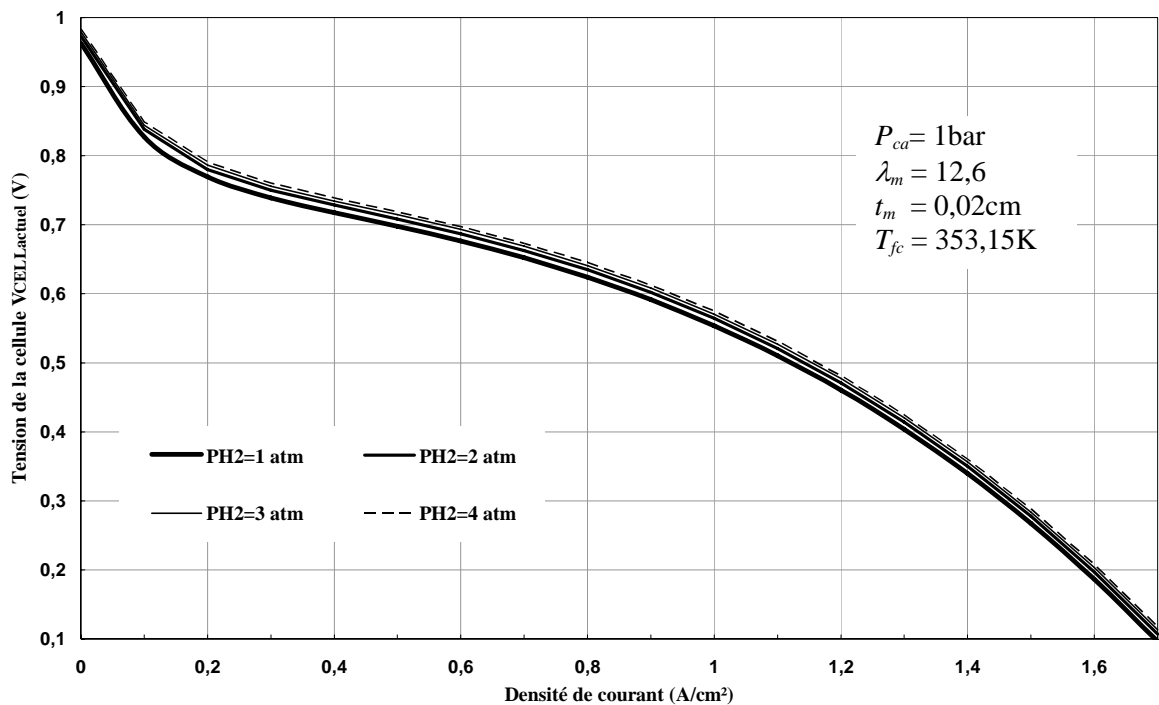


Figure 6. 3 : Influence de la variation de pression partielle de l'hydrogène «PH₂» sur le potentiel de la cellule.

Contrairement au premier constat, la pression totale à la cathode influe d'une manière significative sur de la tension réelle de la cellule (Figure 6.4) et l'augmentation de sa valeur fait nettement améliorer le potentiel sur toute la gamme de densités de courant débité. Ainsi, de la pression $P_{ca}=1 \text{ bar}$ à $P_{ca}=3,5 \text{ bars}$, la tension s'accroît de 0,25V, soit un taux de 23,11 % à la densité de courant de 0,1A/cm² pour acquérir un surplus de 0,75 V avec un taux de 88,67 % à la densité de 1,7A/cm².

Ces performances sont dues à la pressurisation du comburant (oxygène contenu dans l'air) qui réduit les polarisations à la cathode, en augmentant la solubilité et le taux de transfert du comburant ainsi que limitant les pertes par évaporation dans l'électrolyte [15].

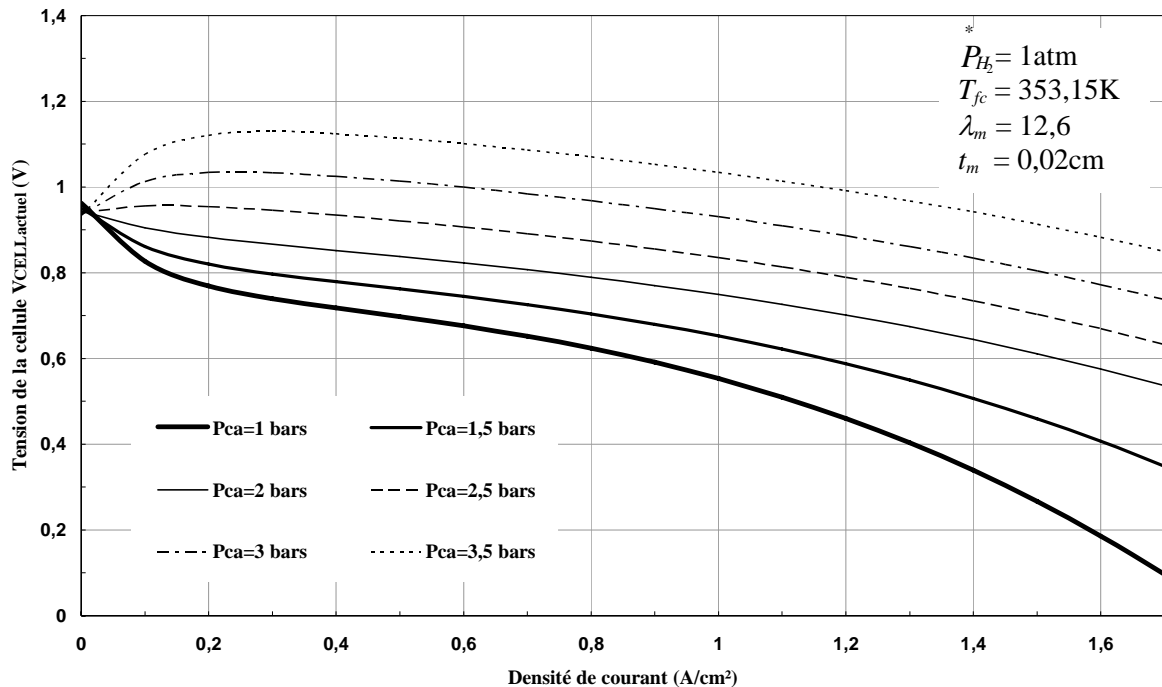


Figure 6.4 : Influence de la pression totale à la cathode «Pca» sur la tension de la cellule.

6.2.1.2.2 Impact de la température de fonctionnement

Le graphique 6.5 illustre la variation du potentiel électrique de la cellule sous l'effet de sa température de fonctionnement T_{fc} qui varie dans un domaine large compris, entre 313,15K et 373,15K.

Nous pouvons noter que l'accroissement de la température de la cellule T_{fc} , engendre une augmentation de sa tension sur l'ensemble des densités de courant qu'elle peut produire. Cependant cette amélioration devient visiblement meilleure avec des densités de courant élevés où un écart de température de 30K (entre 333,15K et 363,15K) donne lieu à un gain de tension de 0,023 V à la densité de 0,1 A/cm² et qui va crescendo jusqu'à 0,366 V avec un taux de croissance de 88,38% à la densité de courant de 1,5 A/cm².

Le motif le plus important de ces résultats est probablement la réduction des différentes polarisations suite à l'augmentation de la température T_{fc} et qui a pour effet d'accroître la cinétique électrochimique, améliorer le transport de masse [18], et diminuer la résistance ohmique de la membrane (équations (4.25) et (4.26)).

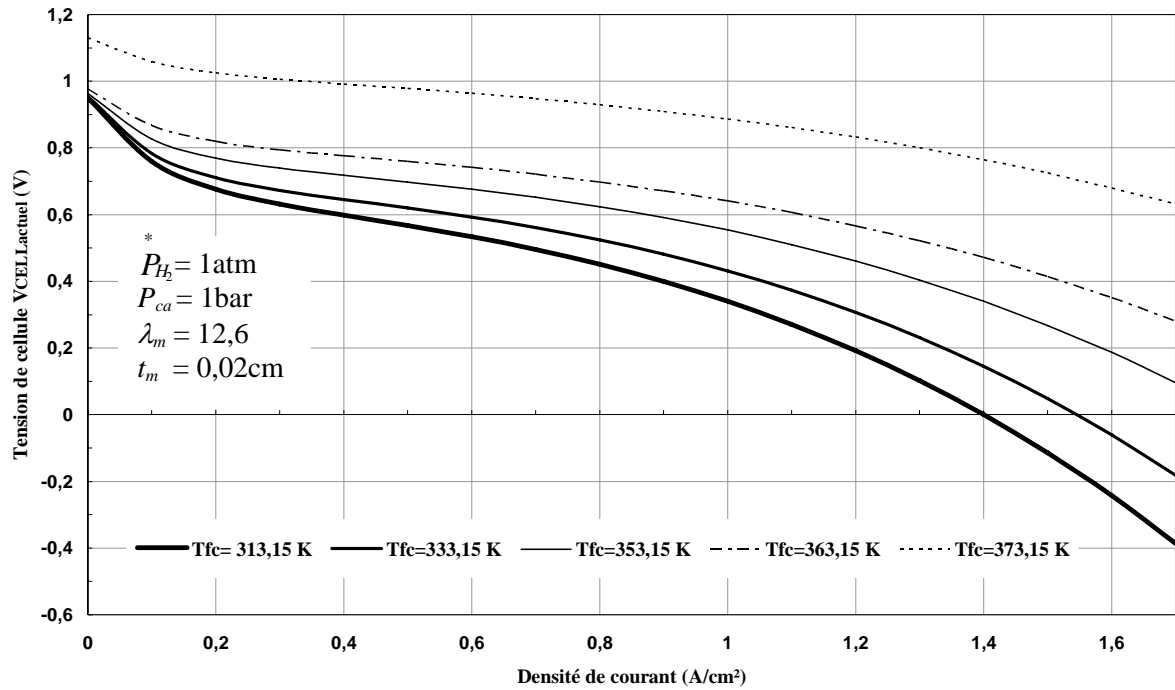


Figure 6. 5 : Influence de la température «Tfc» sur la tension de la cellule.

6. 2.1.2.3 Impacts de l'épaisseur et de l'humidité de la membrane

Nous présentons dans la figure 6.6 les résultats de la variation de l'épaisseur t_m sur la courbe caractéristique de la cellule, où nous constatons que l'augmentation de l'épaisseur de la membrane influe négativement sur le potentiel de la cellule et ainsi un accroissement de $180 \mu\text{m}$ (de $0,002 \text{ cm}$ à $0,02 \text{ cm}$) au niveau de t_m implique une chute de tension qui s'annule pour les faibles densités de courant (0 à $0,1 \text{ A/cm}^2$), et augmente jusqu'à $0,180\text{V}$ avec un taux de décroissance de $65,18\%$ à la densité de $1,7\text{A/cm}^2$. Nous justifions ces résultats par le fait que l'épaisseur t_m étant proportionnelle à la résistance ohmique de la membrane (équation 4. 25) contribue fortement à la progression linéaire de la polarisation ohmique en fonction de la densité de courant (Figure 6.2).

Le graphique 6.7 montre l'influence de la teneur en eau de la membrane λ_m sur le potentiel de la cellule PEMFC, sur lequel il nous est évident de noter que l'augmentation de λ_m améliore clairement le potentiel de la cellule, et vice versa la réduction de la valeur de λ_m entraîne des chutes de tension brusques d'autant plus significatives que λ_m devient plus faible, tel est le cas quand λ_m diminue de la valeur de 4 qui correspond à une humidité relative HR de $28,57\%$ jusqu'à 2 (HR= $14,29\%$), où le potentiel de la cellule chute de 97% à la densité de courant de $0,7 \text{ A/cm}^2$. Cela est dû à la conductivité ionique de la membrane étant celle-ci

proportionnelle à λ_m qui améliore le potentiel de la cellule en réduisant la résistance ohmique de sa membrane. Ainsi pour assurer une bonne conductivité des protons, la membrane doit rester constamment hydratée.

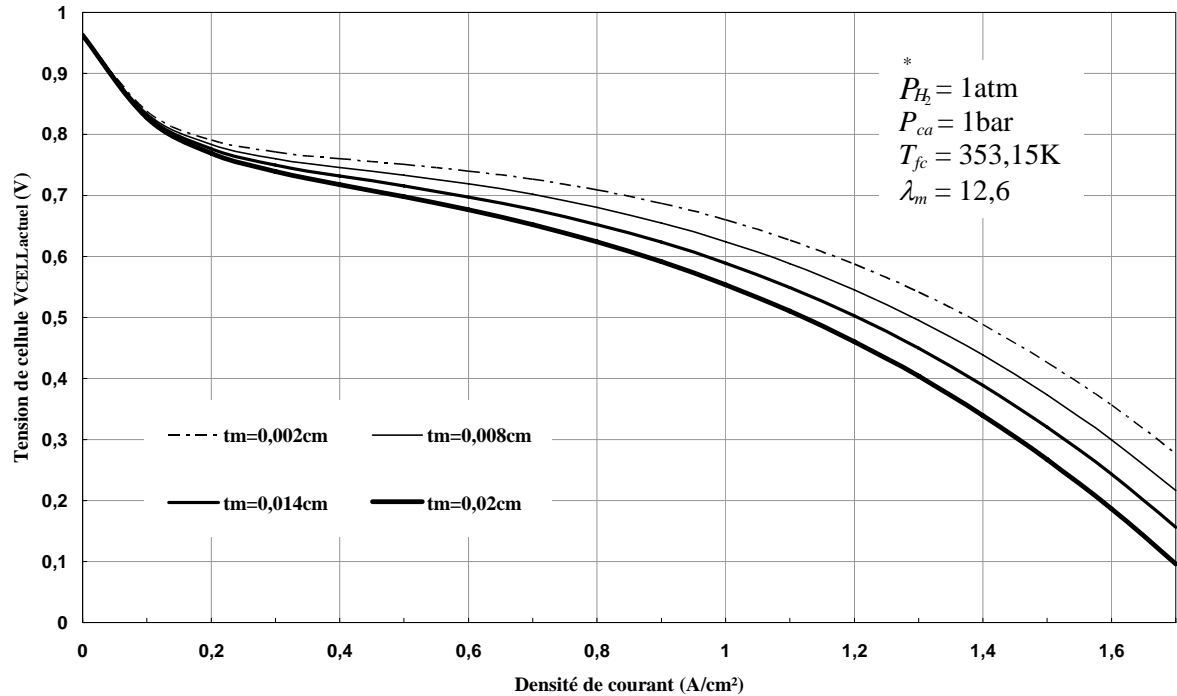


Figure 6. 6 : Effet de variation de l'épaisseur de l'électrolyte « t_m » sur la tension de la cellule.

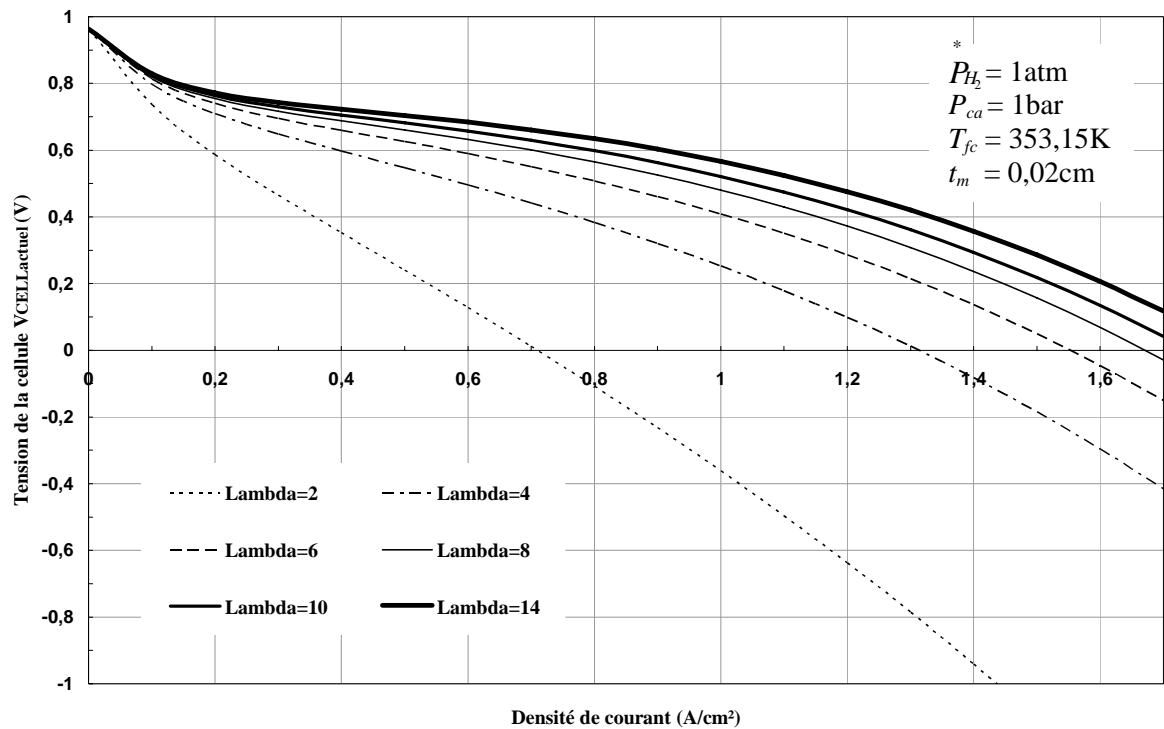


Figure 6. 7 : Effet de la teneur en eau de la membrane « λ_m » sur la tension de la cellule.

6. 2.1.3 Variation de la densité de puissance de la cellule

Compte tenu des conditions opératoires mentionnées sur la figure 6.8, nous présentons l'évolution de la densité de puissance développée par la cellule selon sa densité de courant électrique. Un fait notable est que la densité de puissance est généralement croissante en fonction de celle du courant électrique mais avec différentes vitesses, où pour des densités de courant inférieures à 1 A/cm², elle prend l'allure de segments de droite quasi parallèles de pente comprise entre 0,77 V et 0,99 V ; ensuite elle continue son évolution ascendante sous forme parabolique pour atteindre un optimum de 0,92 W/cm² observé à 1,6 A/cm² ; et finalement diminuer légèrement jusqu'à 0,91 W/cm² à la densité de 1,7 A/cm².

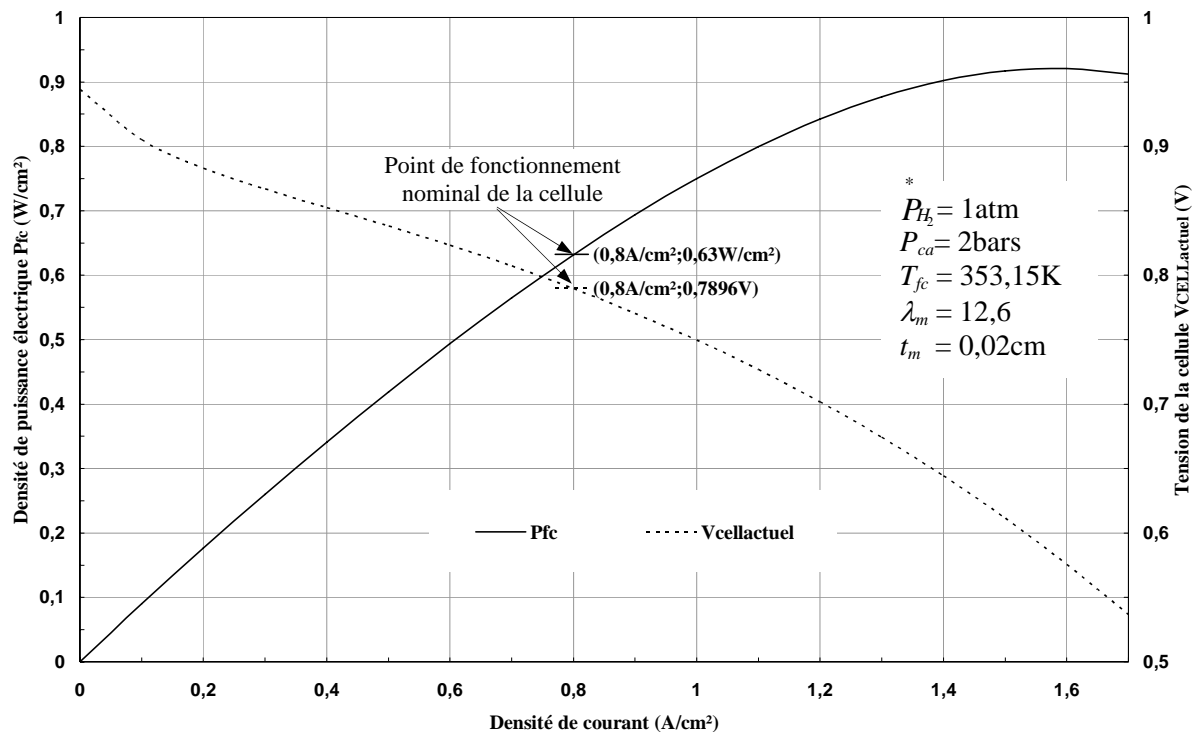


Figure 6. 8 : Variation de la densité de puissance de la cellule en fonction de sa densité de courant électrique (avec indication de la courbe caractéristique (à tirets)).

La densité de puissance fournie par la cellule étant le produit de sa tension par sa densité de courant, nous expliquons de ce fait l'évolution de sa courbe par la réduction relativement lente et faible de son potentiel comparée à la croissance linéaire accélérée de sa densité de courant dont les valeurs trop élevées sont sensiblement affectées par une chute de tension significative (courbe caractéristique).

Pour des raisons liées à la compacité, coût et durée de vie, discutées dans le paragraphe [4. 2.9] du quatrième chapitre, nous nous sommes fixé un point d'opération nominal pour lequel la cellule PEMFC est supposée pouvoir délivrer une densité de puissance d'environ $0,63 \text{ W/cm}^2$ tout en faisant circuler un courant électrique de densité égale à $0,8 \text{ A/cm}^2$, ce qui correspond à un fonctionnement sous une tension de $0,79 \text{ V}$.

6. 2.1.4 Effets de la température et de la pression cathodique sur la densité de puissance

Nous présentons respectivement dans les figures 6.9 et 6.10, l'influence de la température de la cellule et de la pression totale à sa cathode sur la densité de puissance électrique produite.

Pour le premier graphique, nous pouvons noter que :

- Les courbes de densité de puissance évoluent pareillement selon la température T_{fc} mais avec des valeurs très différentes.
- L'augmentation de la température de la cellule T_{fc} améliore sensiblement sa densité de puissance et réciproquement, la diminution de sa valeur, réduit la densité de puissance électrique pouvant ainsi générer des valeurs négatives théoriques (inversion de la polarité).
- L'écart entre les densités de puissance correspondant à une différence de température se fait mieux sentir aux densités de courant élevées où pour un $\Delta T_{fc} = 10\text{K}$ (entre $363,15\text{K}$ et $373,15\text{K}$) et une densité de courant de $1,7\text{A/cm}^2$, la densité de puissance passe de $0,48 \text{ W/cm}^2$ à $1,07 \text{ W/cm}^2$, tandis que cet écart se réduit nettement avec la diminution de la densité de courant où il n'est alors égale qu'à $0,02 \text{ W/cm}^2$ à la densité de $0,1 \text{ A/cm}^2$.
- L'élévation de la température T_{fc} fait déplacer l'optimum de la densité de puissance vers les valeurs croissantes de la densité de courant. Ainsi, à la température de $333,15\text{K}$, l'optimum $0,433 \text{ W/cm}^2$ est atteint à la densité de $0,9 \text{ A/cm}^2$, alors qu'à la température de $373,15\text{K}$ l'optimum $1,088 \text{ W/cm}^2$ est atteint à $1,6 \text{ A/cm}^2$.

Concernant l'impact de la variation de la pression totale cathodique sur la densité de puissance électrique de la cellule, nous pouvons affirmer que la surpression du comburant fait accroître la densité de puissance et, dans ce cas, les mêmes remarques citées ci haut peuvent être tirées. Cependant l'écart observé à une densité de courant donnée s'amplifie avec l'augmentation de la température, à l'inverse de la surpression cathodique, qui le fait réduire.

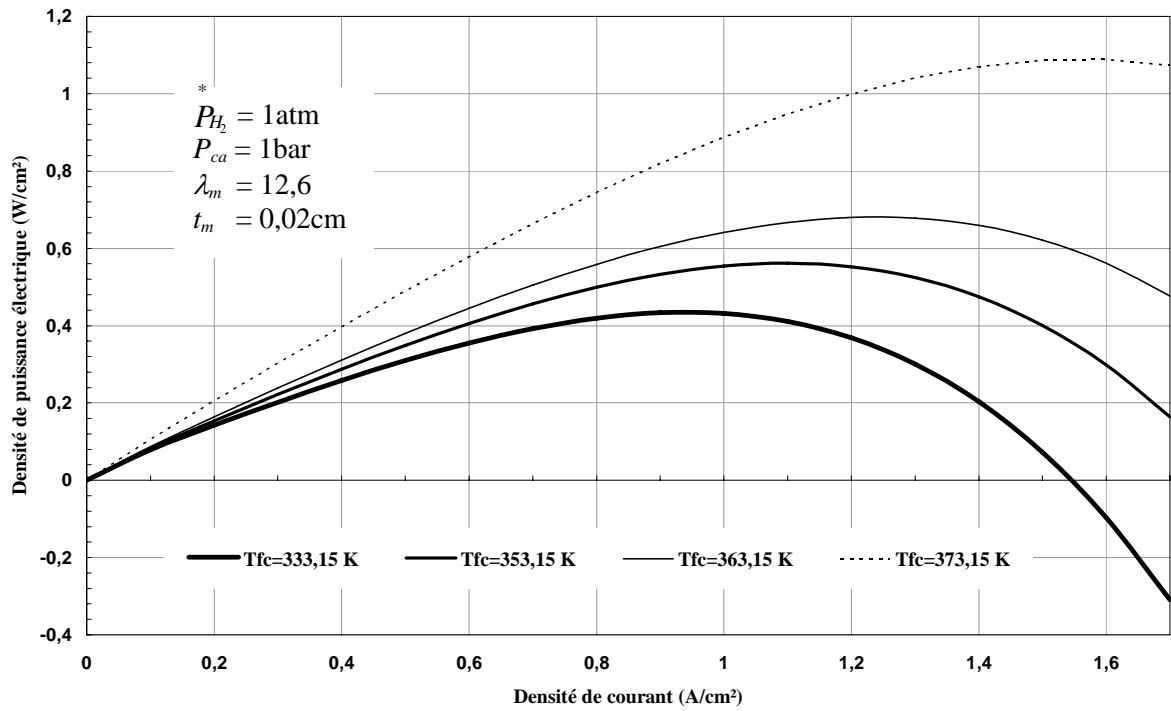


Figure 6. 9 : Influence de la température de cellule «Tfc» sur sa densité de puissance électrique.

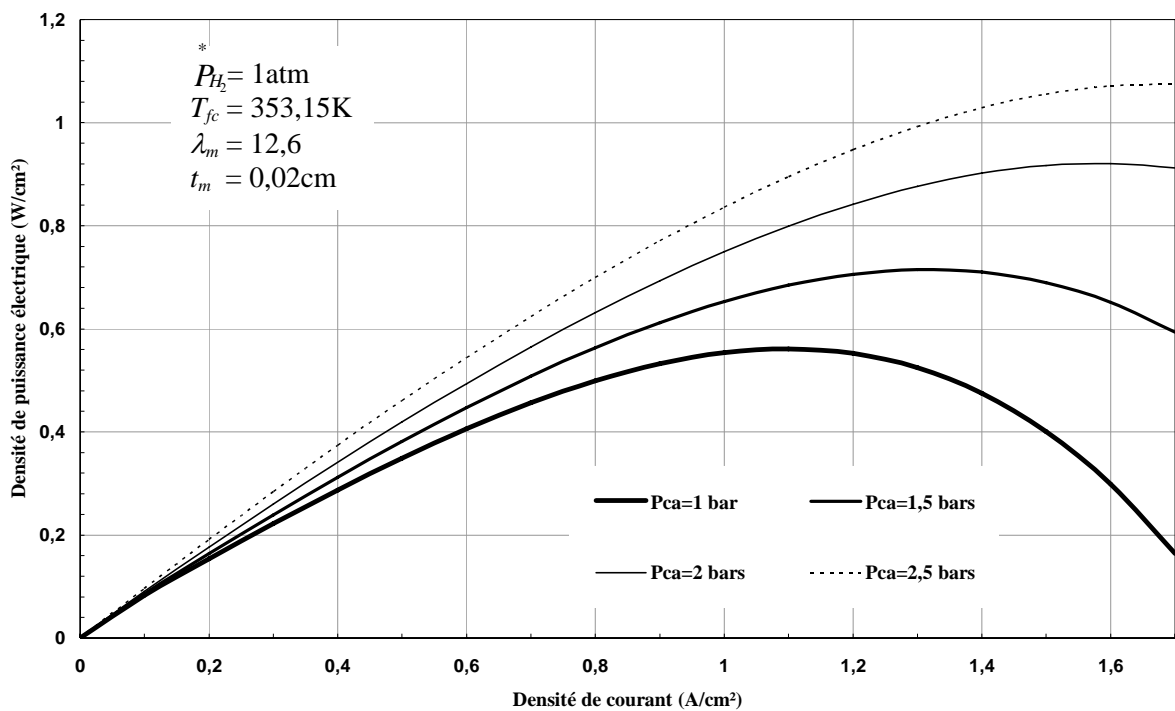


Figure 6. 10 : Influence de la pression totale à la cathode «Pca» sur la densité de puissance électrique de la cellule.

6. 2.1.5 Variation du rendement thermique de la cellule

Le graphique 6.11 montre l'évolution de l'efficacité thermique de la cellule PEMFC en fonction de la densité du courant produit. Nous pouvons constater que le rendement thermique est inversement proportionnel à la densité de courant où il atteint son maximum de 67% à la densité de courant nulle et diminue jusqu'à la valeur de 38,07% enregistrée à 1,7 A/cm².

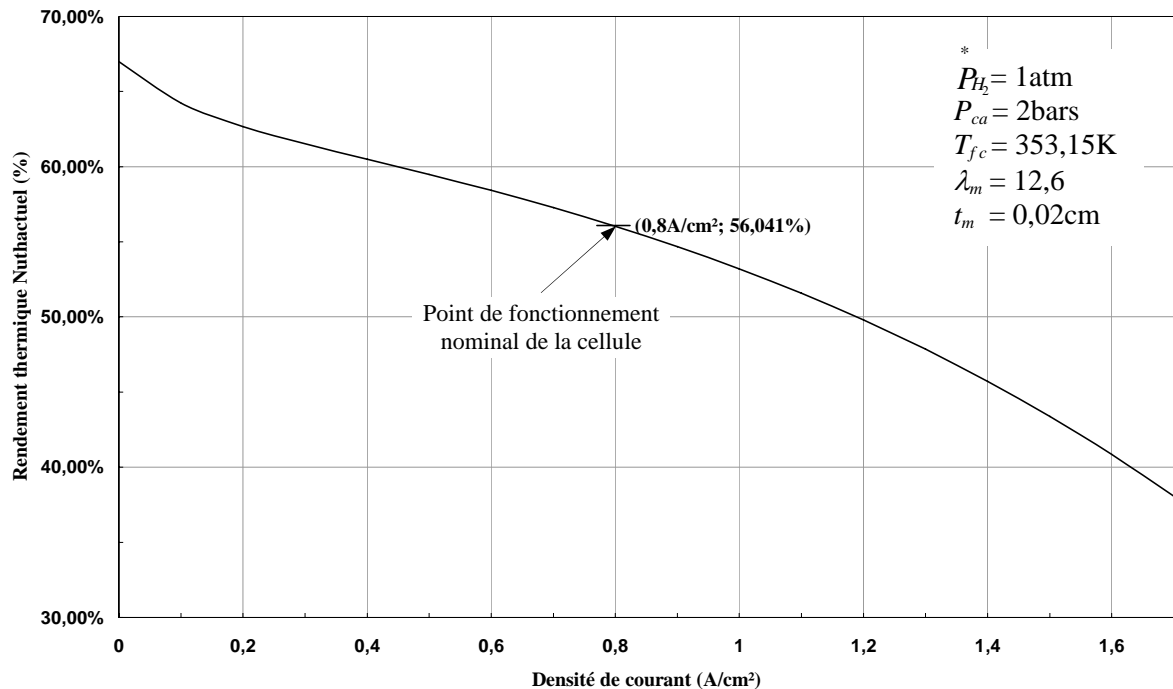


Figure 6. 11 : Variation du rendement thermique de la cellule en fonction de la densité de courant (avec indication du point nominal de fonctionnement).

La forme générale de ce tracé est pratiquement identique à celle de la courbe de polarisation présentée sur la figure 9.7, car pour de basses densités de courant correspond des rendements thermiques élevés s'étendant de 60% à 67%, tandis que le fonctionnement avec des densités de courant importantes fait nettement abaisser les rendements jusqu'à des valeurs inférieures à 40%. Ce qui reflète la stricte corrélation du rendement thermique de la cellule avec son potentiel électrique traduite par la relation (4. 41).

Autour de son point de fonctionnement nominal, notre cellule dispose d'un rendement thermique défini par rapport à la puissance calorifique de l'hydrogène avoisinant les 56%.

6. 2.1.6 Effets de la température et de la pression cathodique sur l'efficacité thermique

L'influence de la température de la cellule sur son rendement thermique est illustrée dans le graphique 6.12 et l'impact de la pression totale à la cathode sur l'efficacité thermique de la cellule est donné par le diagramme 6.13.

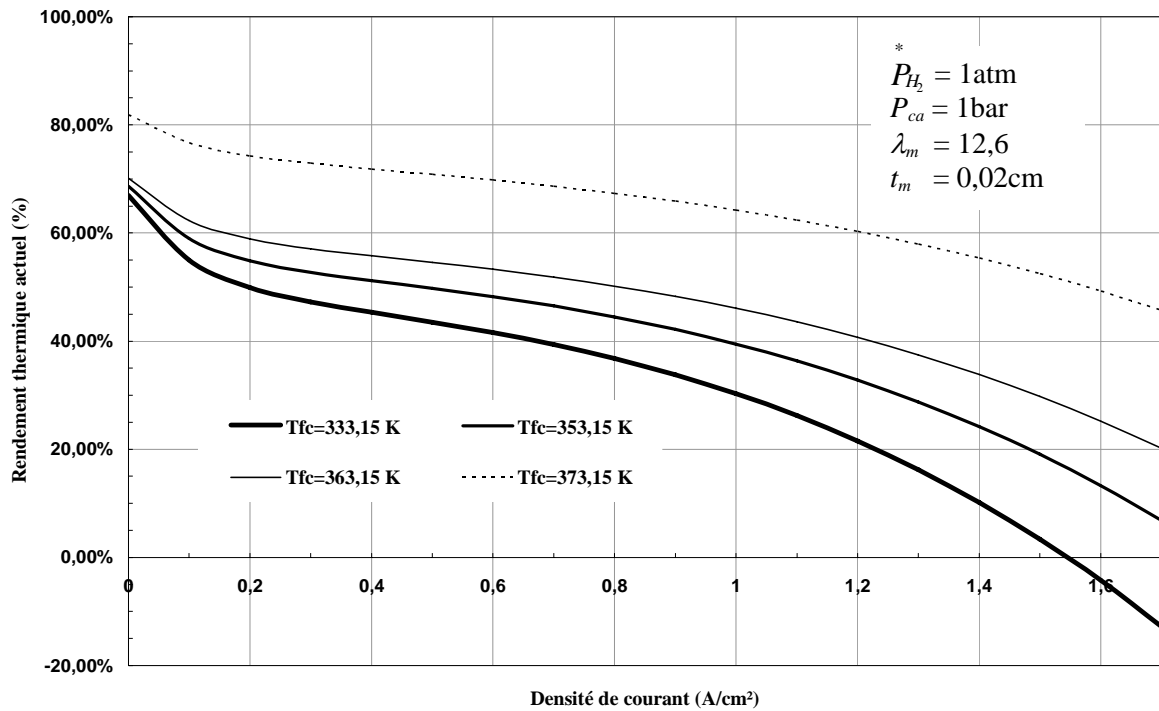


Figure 6. 12 : Effet de la variation de température « T_{fc} » sur le rendement thermique de la cellule.

Dans le graphe 6.12, nous pouvons voir que les courbes du rendement thermique issues de différentes températures T_{fc} , prennent la même forme et que l'élévation de cette température améliore relativement l'efficacité thermique de la cellule pour toutes les valeurs de sa densité de courant, en particulier pour celles les plus élevées d'entre elles, ainsi un écart de température de 20K (entre 353,15K et 373,15K) augmente l'efficacité thermique de 17,67 % à 0,1 A/cm^2 et de 38,85 % à 1,7 A/cm^2 .

Quant à l'effet de la pression totale de la cathode sur le rendement thermique indiqué par la figure 6.13, nous remarquons que l'augmentation de la pression cathodique P_{ca} fait en général accroître l'efficacité thermique de la cellule sauf pour les plus faibles valeurs de densité de courant où nous constatons qu'elle reste presque identique et n'excède pas les 70%.

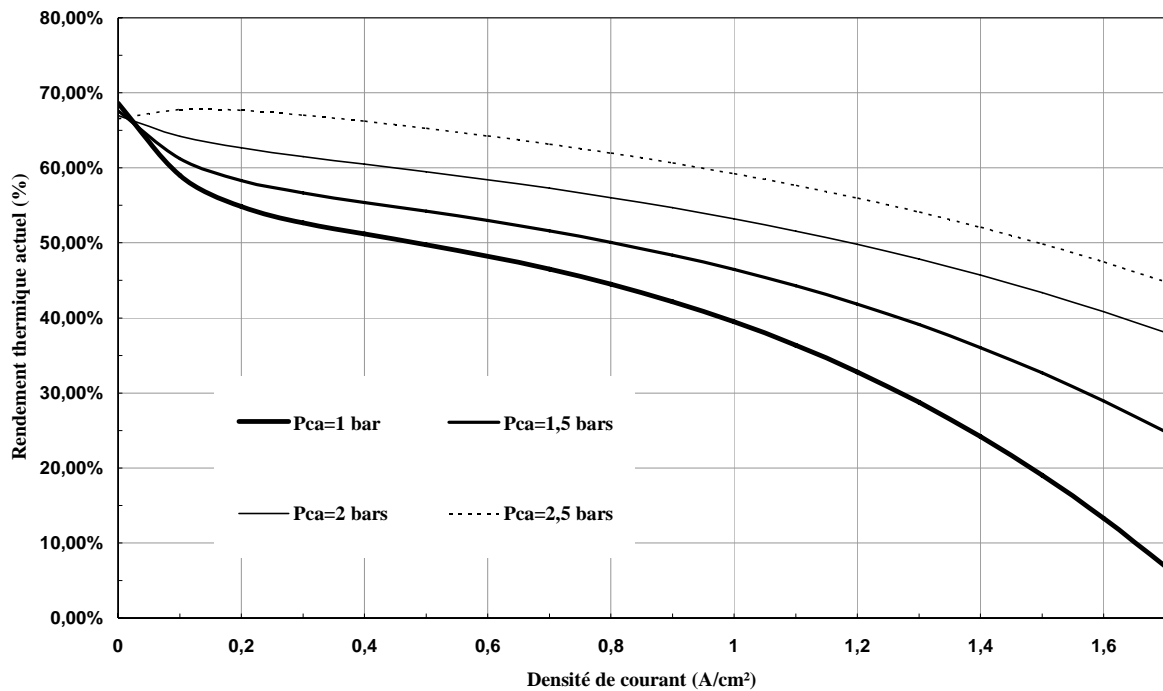


Figure 6.13 : Effet de la variation de pression «Pca» sur le rendement thermique de la cellule.

6.2.2 Performances de la pile à combustible PEMFC alimentant le véhicule

Dans la suite de notre étude, nous présentons, en fonction de l'intensité du courant débité, les propriétés électriques de la pile PEMFC constituée d'un empilement en série de 317 cellules élémentaires identiques à celle analysée auparavant.

Pour satisfaire aisément la demande en puissance du véhicule à PAC choisi, et sur la base de l'analyse paramétrique établie précédemment, nous admettons que notre pile PEMFC opère sous des conditions précises et permanentes, tout en lui affectant un point nominal de fonctionnement.

Il faut noter aussi, que dans un premier temps, notre pile est supposée être directement alimentée par de l'hydrogène pur stocké à bord du véhicule qui l'intègre. Les résultats relatifs aux autres types de combustible à savoir: l'essence et le méthanol sont exposés dans l'annexe D de ce mémoire.

6. 2.2.1 Courbe de polarisation de la pile à combustible PEMFC

Le graphique 6.14 montre la courbe caractéristique de la pile PEMFC, sur laquelle nous constatons que le potentiel de la pile est inversement proportionnel au courant électrique qu'elle peut délivrer. Effectivement, la tension de la pile chute de la valeur de 299,3 V quand elle est débranchée de la charge, à la valeur de 170 V quand elle fait circuler à travers ses deux électrodes un courant d'intensité de 488,75 A.

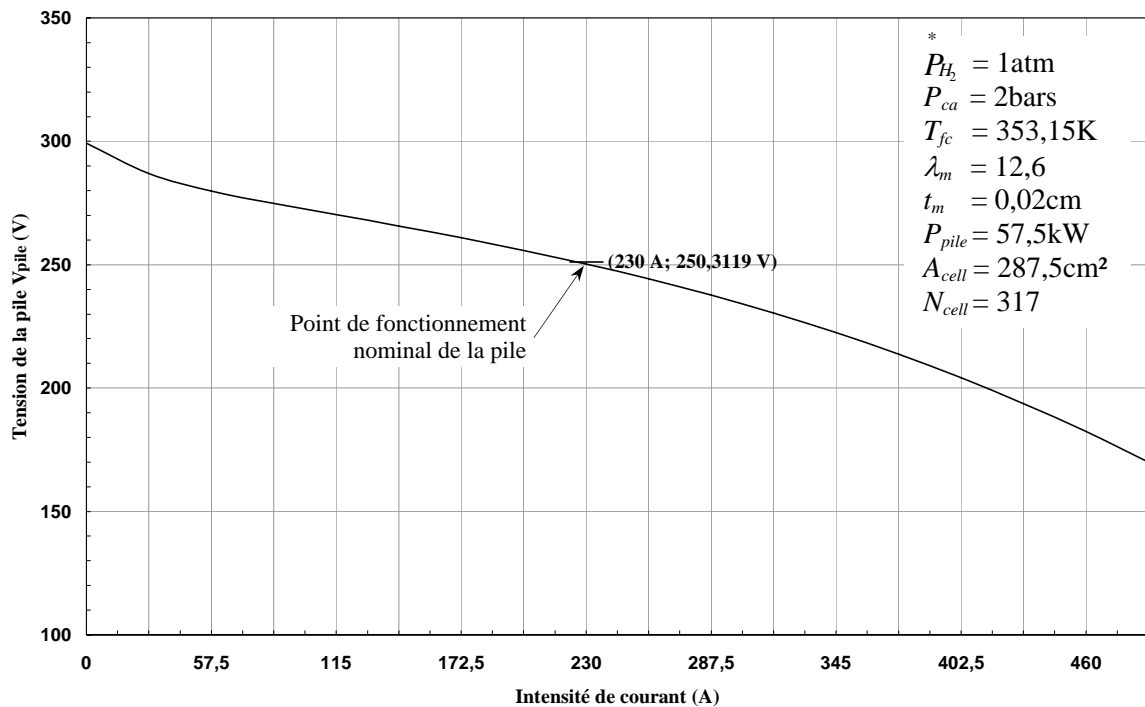


Figure 6. 14 : Courbe caractéristique de la pile PEMFC propulsant le véhicule.

Cette baisse de tension variant selon le courant débité de 4,13% jusqu'à 43,18% est essentiellement due au cumul des diverses polarisations, notamment celles de diffusion qui prennent lieu aux niveaux de l'ensemble des cellules élémentaires, d'où la similitude de cette courbe caractéristique avec celle de la cellule unitaire (figure 6.8).

Sur le même tracé, nous avons indiqué les coordonnées du point de fonctionnement nominal de la pile correspondant à sa puissance maximale produite pour propulser le véhicule à PAC considéré. Nous définissons ce point par l'intensité de courant de 230A à une tension avoisinant les 250V.

6.2.2.2 Evolutions de la puissance brute et nette de la pile PEMFC

Nous présentons dans la figure 6.15 la variation de la puissance électrique totale et nette du système pile à combustible en fonction de l'intensité du courant tiré, pour laquelle de pertinentes constatations peuvent avoir lieu, notamment :

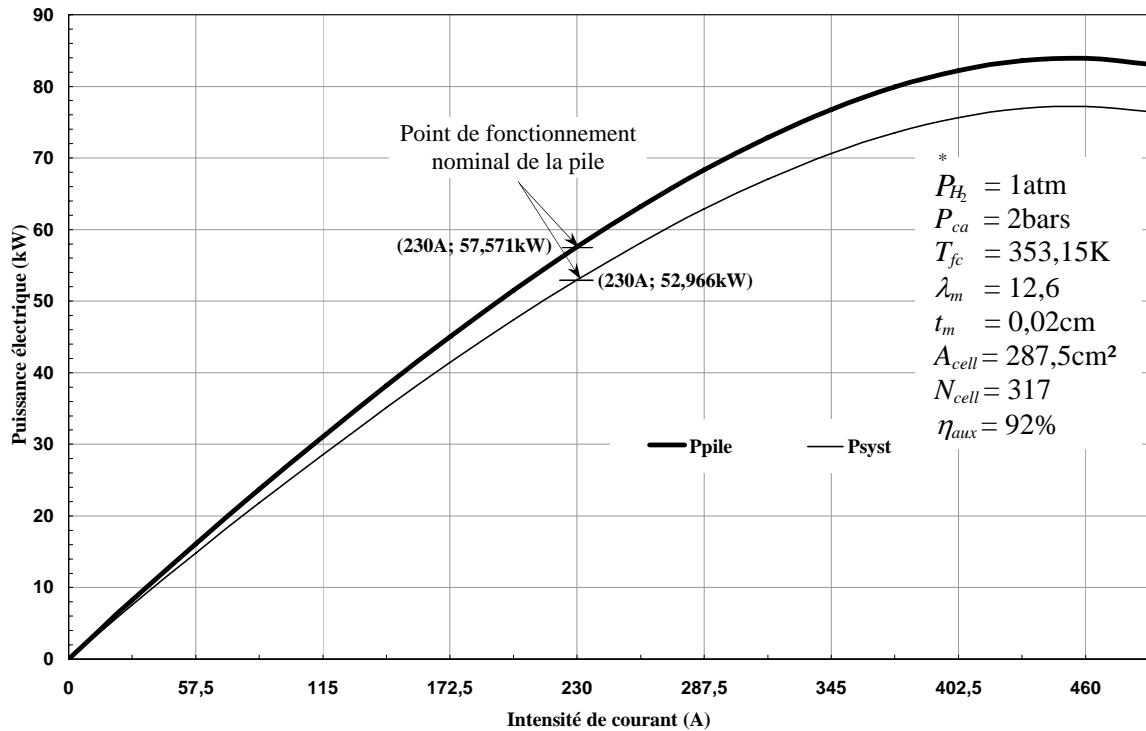


Figure 6.15 : Variations des puissances électriques brute et nette de la pile en fonction du courant généré.

- La puissance brute de la pile PEMFC varie quasi linéairement avec l'augmentation du courant électrique dans les intervalles [0A ; 115A], [115A ; 201,25A] et [201,25A ; 287,5A] avec des rapports moyens de proportionnalité respectifs de 0,28 kV, 0,26 kV et 0,24 kV. Au-delà de ces valeurs, le graphique continue suivant une lente progression parabolique jusqu'à une valeur optimale de 83,92 kW atteinte à 460 A, au-delà de laquelle, l'augmentation de l'intensité du courant généré fait diminuer la puissance totale disponible de 813W à 488,75 A.
- La puissance électrique nette du système pile PEMFC varie selon l'intensité du courant d'une manière semblable à sa puissance totale, mais avec des valeurs inférieures suite à la fraction d'électricité consommée par les auxiliaires de la pile PEMFC : pompes, compresseur, ventilateurs...

- L'écart entre la puissance brute P_{pile} et nette P_{syst} du système pile PEMFC s'amplifie avec l'augmentation du courant délivré, qui exigerait une puissance électrique parasite plus importante pour dissiper la quantité croissante de chaleur perdue dégagée par la pile, et alimenter le système de compression du comburant dont le débit augmente considérablement avec les grandes charges électriques.
- En son point opérationnel nominal, la pile PEMFC délivre une puissance électrique brute de 57,57 kW au véhicule, au moment où ses organes périphériques n'en consomment que 8 %, donnant lieu ainsi à une puissance nette supérieure à 52,96 kW pour le système PAC.

6. 2.2.3 Evolutions du rendement de la pile PEMFC et de son système global

Le graphe 6.16 rend compte de l'évolution en fonction de l'intensité de courant du rendement de la pile PEMFC et de son système global comprenant les divers composants périphériques, discutés dans le troisième chapitre de ce mémoire, à l'exception du processus de fabrication de l'hydrogène à bord. Nous pouvons constater que :

- Le rendement de la pile η_{pile} est inversement proportionnel au courant produit, où il passe de 63,65% à courant nul à la valeur de 36,16% enregistrée à 488,75 A avec un taux de décroissance dépassant les 43,18%. A notre avis, la forte dépendance du rendement de l'efficacité électrique de la pile exprimée par le rapport de ses tensions effective et idéale (équation (4. 40)) peut en être la cause principale, d'où la similarité de son tracé par comparaison avec celui de la courbe caractéristique (Figure 6.14).
- Le rendement global η_{syst} du système PAC suit fidèlement l'allure de l'efficacité η_{pile} de sa pile PEMFC, bien qu'il soit diminué par un écart progressivement décroissant avec l'augmentation du courant généré, où nous pouvons observer une différence allant de 16,80% pour une pile PEMFC en circuit ouvert jusqu'à environ 9,55% à l'intensité maximale de 488,75 A. Nous justifions cette baisse de rendement par la contribution parasite simultanée de l'efficacité des auxiliaires η_{aux} et du facteur d'utilisation du combustible (hydrogène pur).
- Au point de fonctionnement nominal, le rendement de la pile PEMFC considérée seule est égal à 53,24 % pendant que l'efficacité globale de son système ne dépasse pas 39,19 %.

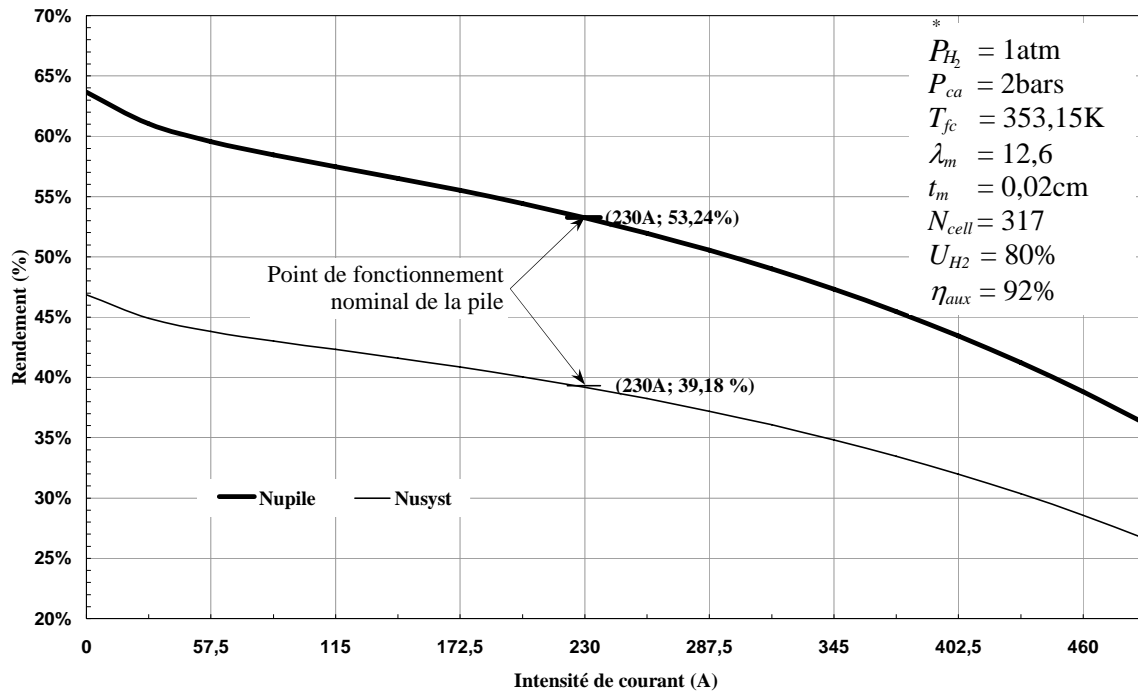


Figure 6. 16 : Variations des rendements de la pile et de son système en fonction du courant électrique débité.

6. 2.2.4 Evolution des débits massiques des gaz réactifs

Le diagramme 6.17 présente la variation du débit massique total de l'hydrogène pur et de l'air admis à travers les plaques bipolaires de la pile en fonction du courant électrique produit par cette dernière. Nous pouvons remarquer que le débit massique de l'hydrogène pur varie linéairement avec le courant de la pile et suit une pente de $4,14 \cdot 10^{-6} \text{ kg/Coulombs}$, la même constatation peut se faire pour le débit d'air admis avec un coefficient de proportionnalité de $2,26 \cdot 10^{-4} \text{ kg/Coulombs}$; ainsi un fort appel de courant requière une utilisation considérable des réactants en présence.

Cependant, la consommation de l'air est presque 55 fois plus grande que celle de l'hydrogène, car d'une part, l'oxygène autant que comburant de la réaction électrochimique, n'est présent que de 21% en proportion molaire dans l'air, et d'autre part, la masse molaire et la stœchiométrie de l'air sont plus importantes que celles de l'hydrogène pur.

Quant au point de fonctionnement nominal de la pile, il est caractérisé par un débit massique d'air comprimé à 2 bars estimé à 52,06 g/s et d'un débit total admis d'hydrogène pur de 0,95 g/s.

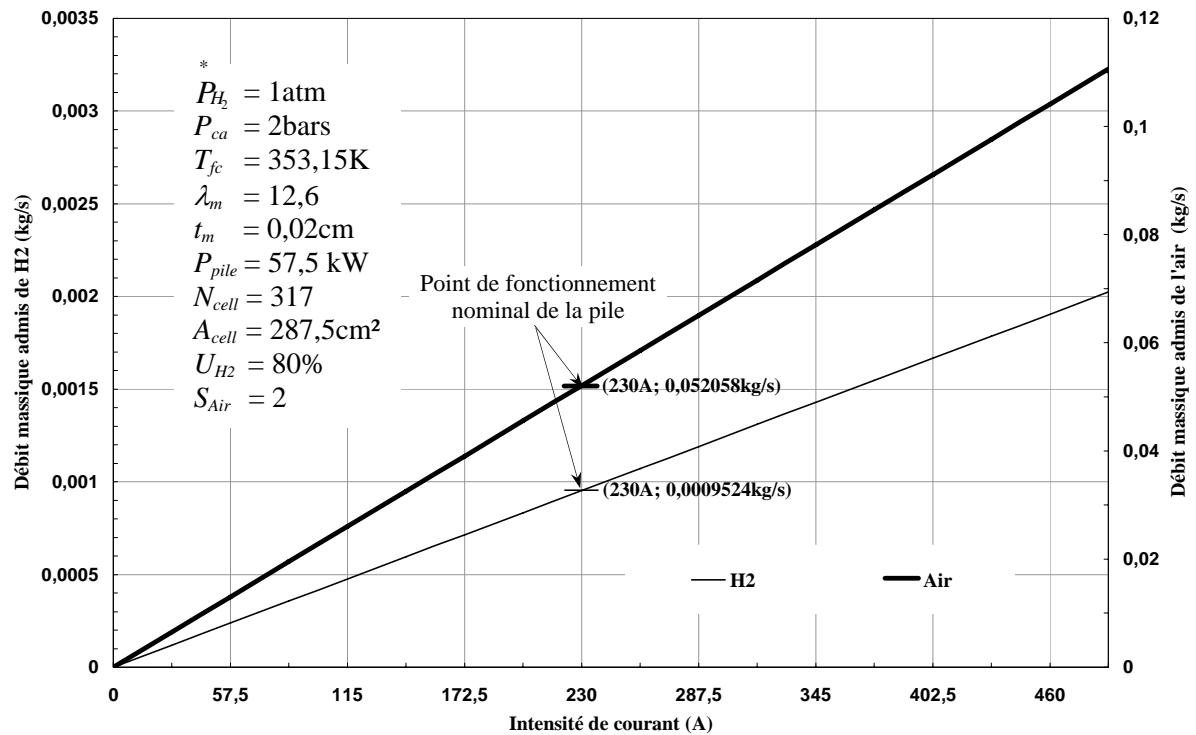


Figure 6. 17 : Variations des débits massiques totaux des gaz réactifs admis selon l'intensité du courant tiré de la pile.

6. 2.3 Résultats du modèle de véhicule à pile à combustible PEMFC

6. 2.3.1 Profil de vitesse et variation de la puissance propulsive du véhicule

La figure 6.18 présente l'évolution de la vitesse et de l'accélération du véhicule au cours du cycle de conduite NEDC. Le profil linéaire de vitesse peut se diviser en deux parties indiquant deux états de conduite différents :

1. La première, comprise entre 0 s et environ 800 s, étant la plus dominante, représente le trafic urbain durant le cycle, et est caractérisée par une succession de quatre profils étroits identiques, dont la vitesse maximale ne dépasse pas 14,39 m/s avec de nombreuses manœuvres d'accélération et de ralentissement enregistrées, allant de $0,72 \text{ m/s}^2$ à $-1,02 \text{ m/s}^2$.
2. La seconde tranche débute de 800 s jusqu'à la fin du cycle, avec un large profil de vitesse dont l'optimum de 33,33 m/s est atteint après une suite d'accélération en gradins ne dépassant pas $0,5 \text{ m/s}^2$, ce qui simule le trafic sur route en dehors de la ville.

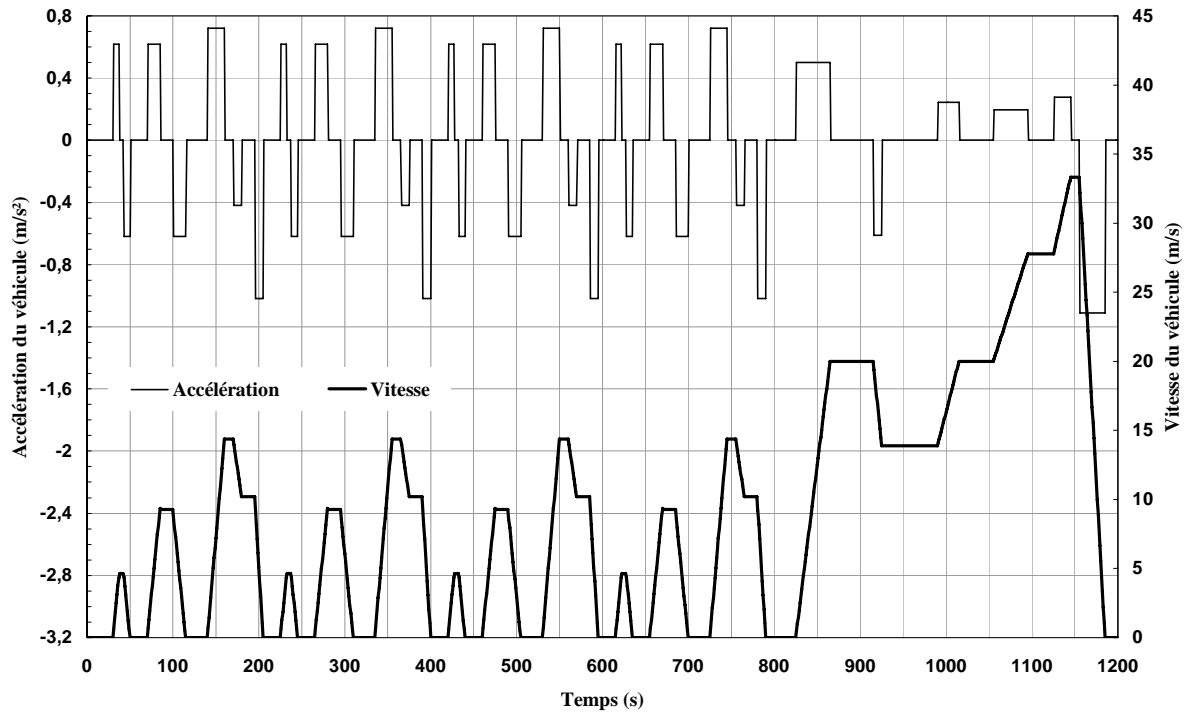


Figure 6. 18 : Profils linéaires de vitesse et d'accélération du véhicule en fonction du temps au cours du cycle de conduite européen «NEDC».

Nous montrons sur la figure 6.19 la variation de la puissance propulsive demandée à la roue du véhicule durant le cycle de conduite NEDC.

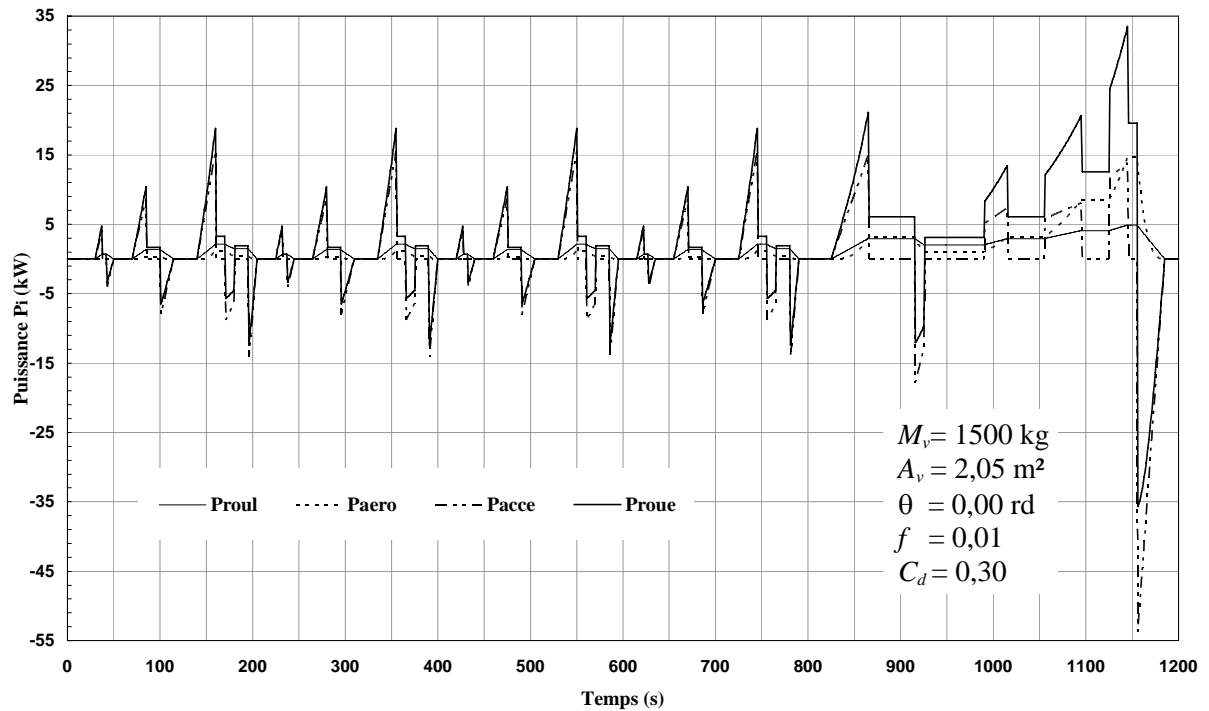


Figure 6. 19 : Contributions des différentes résistances de conduite à la puissance propulsive.

Une première constatation, est que la demande en puissance propulsive se fait le mieux sentir dans le trafic de route avec un maximum de 33,48 kW observé à la 1145 s, tandis que la puissance de traction maximale est égale à seulement 18,82 kW durant le trafic urbain, ce qui explique que les contraintes de conduite à vaincre durant le trafic de route sont plus importantes que celles de la circulation urbaine.

Notons également que les valeurs négatives de la puissance propulsive représentent ici les puissances mécaniques pouvant être récupérées après conversion en puissance électrique (génératrice ou alternateur) par le véhicule durant ses phases de décélération.

Pour pouvoir analyser les contributions relatives de chaque résistance de conduite, nous illustrons respectivement sur les figures 6.20 et 6.21 l'évolution, pendant le trafic urbain et le trafic de route, des diverses puissances nécessaires au véhicule pour surmonter la résistance de l'air, de roulage, et d'accélération.

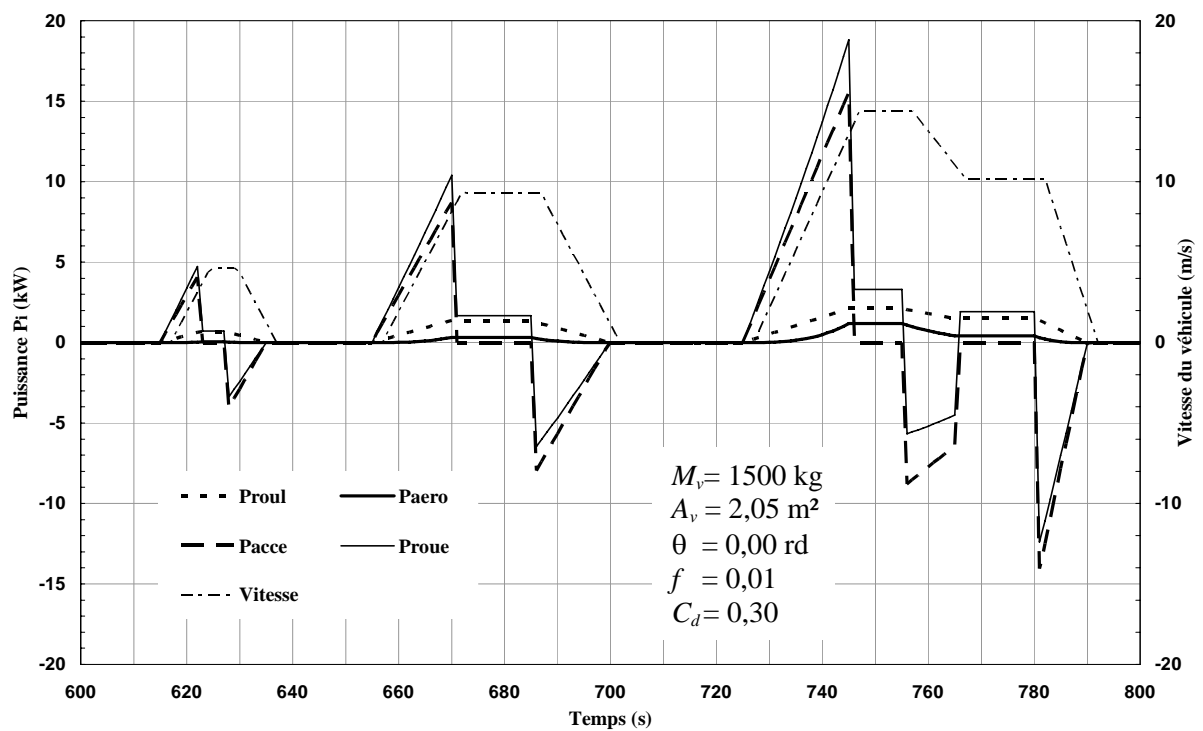


Figure 6. 20 : Diverses puissances requises pour surmonter les résistances de conduite durant le trafic urbain du cycle «NEDC».

Sur le graphique obtenu, il est intéressant de noter que :

- Durant le trafic urbain et pour de faibles vitesses constantes du véhicule, la résistance de roulage est la plus dominante avec une puissance de 2,12 kW à la vitesse de 14,38 m/s, alors

que celle de la traînée aérodynamique est presque négligeable pour les vitesses ne dépassant pas 10 m/s. Cependant, aux changements de vitesses, la résistance d'accélération devient prépondérante le long du parcours, et grâce à l'inertie du véhicule, c'est cette composante qui permet de récupérer, durant les phases de décélération, une bonne partie de la puissance du véhicule après avoir compensé les autres résistances de conduite et contribue donc avec un gain en puissance évalué à 12,39 kW à la 781^e seconde du cycle.

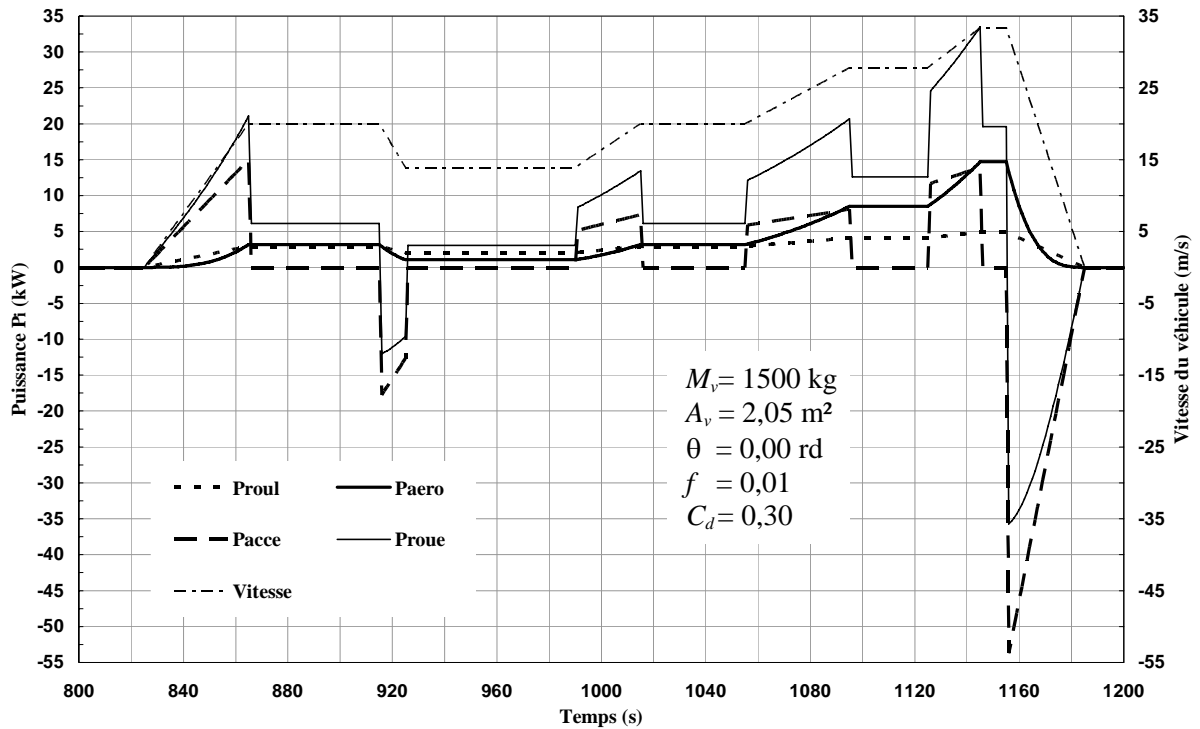


Figure 6. 21 : Diverses puissances nécessaires pour vaincre les résistances de conduite pendant le trafic de route du cycle «NEDC».

- Pendant la circulation de route, pour de grandes vitesses constantes, la résistance de l'air est la plus dominante où nous relevons que sa puissance à la vitesse de 33,33 m/s est presque trois fois égale à celle de la résistance de roulage et l'écart durant les phases transitoires entre la résistance aérodynamique et celle d'accélération se réduit de plus en plus avec l'augmentation de la vitesse, et devenant pratiquement nul (0,56 %) à la vitesse de 32,5 m/s. À la fin du cycle, la dernière décélération du véhicule estimée à $-1,11$ m/s² à partir de sa vitesse maximale, lui fait bénéficier d'une très grande puissance mécanique allant jusqu'à 53,70 kW.

À l'instar des constatations établies précédemment, nous concluons que la masse totale du véhicule ainsi que les frottements de ses pneus avec la route sont les facteurs prédominants pour la demande en puissance propulsive dans le cycle urbain, tandis que l'aérodynamisme de la carrosserie du véhicule en est l'élément décisif durant le trafic de route.

6. 2.3.2 Evolutions de la puissance totale du véhicule et de la pile PEMFC au cours du cycle

La figure 6.22 montre la variation de la puissance totale du véhicule durant le cycle NEDC et la figure 6.23 illustre l'évolution temporelle de la puissance électrique délivrée par la pile PEMFC pour répondre à cette demande instantanée en puissance.

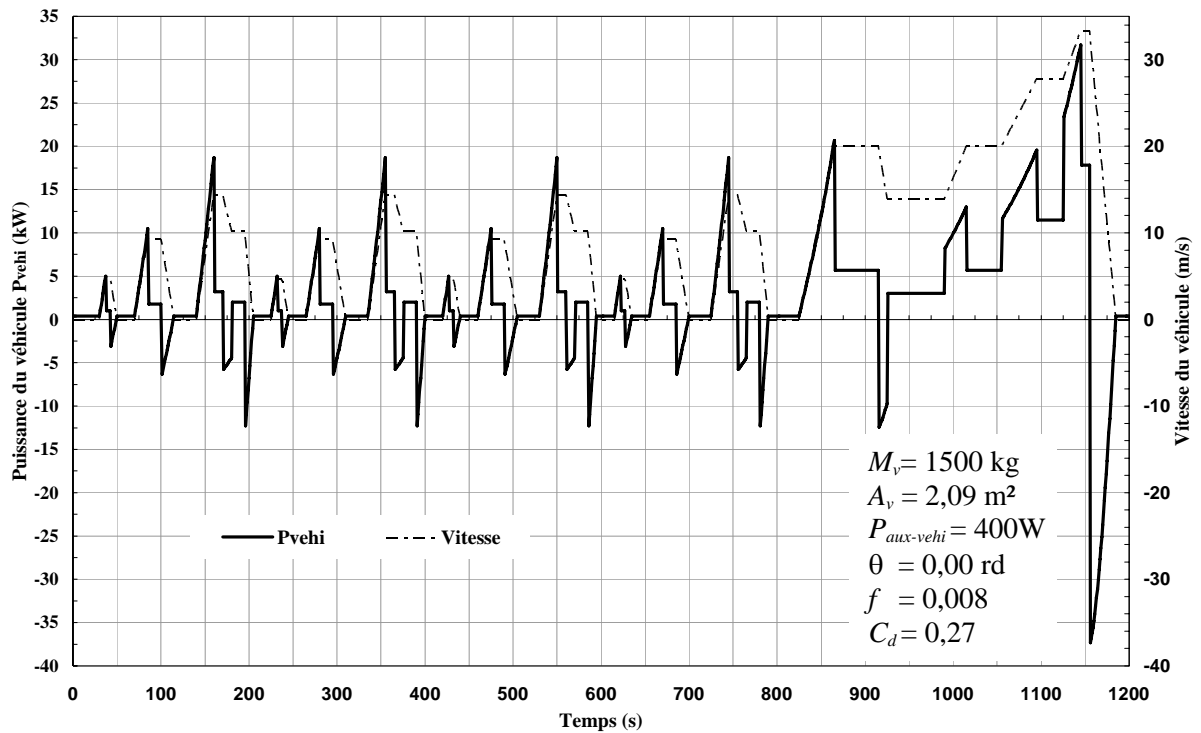


Figure 6. 22 : Evolution temporelle de la puissance totale requise par le véhicule «P_{veh}» durant le cycle de conduite « NEDC ».

Notons ici que la configuration «Full power» optée pour notre véhicule exclut l'emploi du dispositif de puissance maximale à bord (batteries ou super condensateur) pour le stockage d'énergie électrique. Ainsi nous n'avons pas tenu compte de la puissance totale du véhicule, récupérable pendant le cycle et donnée par l'aire de la partie négative de la courbe de P_{veh} dans la figure 6.22.

Par ailleurs, deux faits essentiels peuvent être relevés :

- A l'exception des puissances recouvrables, la pile PEMFC répond parfaitement aux demandes instantanées en puissance totale requise par le véhicule durant tout le cycle de conduite. Effectivement, nous pouvons voir clairement que la pile PEMFC assure une faible puissance qui ne dépasse pas 0,45 kW pour alimenter les différents accessoires du véhicule à l'arrêt, et qu'elle fournit la puissance électrique maximale quand le véhicule affronte des fortes résistances de conduite: tel est le cas durant le trafic urbain, où la pile délivre la puissance électrique de 25,46 kW pour permettre au véhicule de vaincre la demande de 18,70 kW, et procure également une puissance de 43,21 kW quand le véhicule en a besoin pour surmonter le pic de 31,69 kW observé pendant la circulation de route.
- La pile PEMFC débite plus d'énergie électrique durant le trafic de route avec une moyenne en puissance de 10,37 kW que pendant tout le trafic urbain où cette moyenne est uniquement de 2,90 kW.

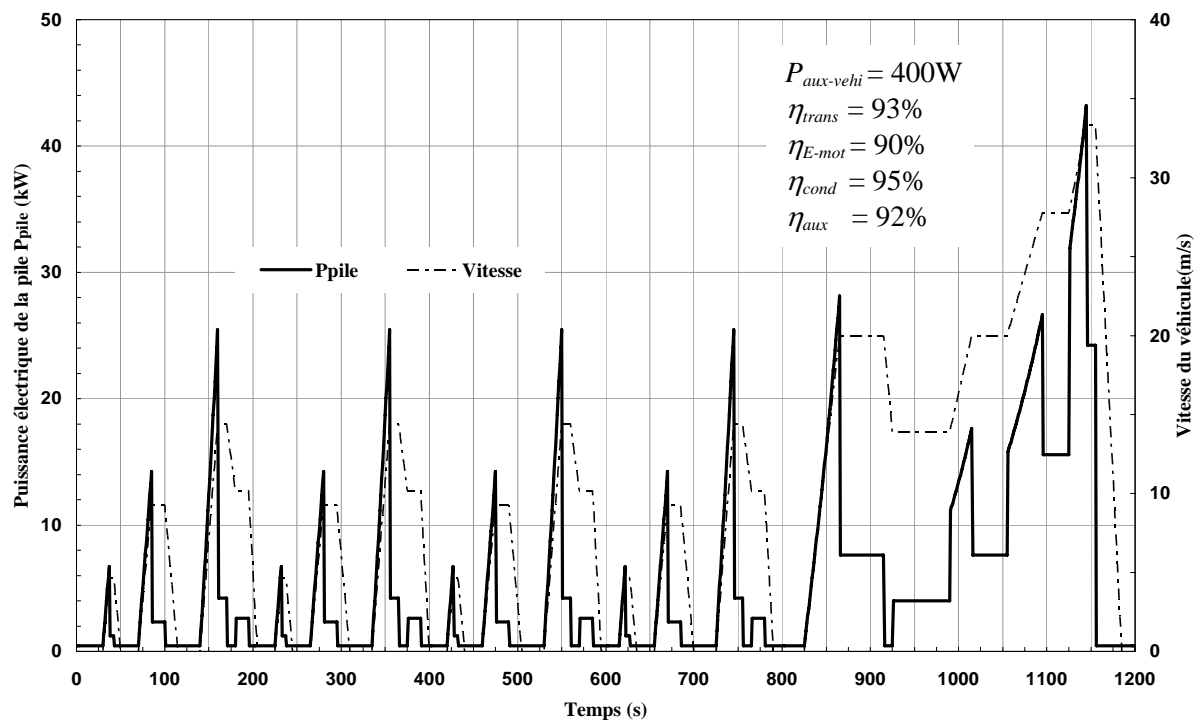


Figure 6. 23 : Variation dans le temps de la puissance électrique développée par la pile PEMFC au cours du cycle «NEDC».

Pour examiner l'effet de certains paramètres relatifs au véhicule et à l'environnement de conduite sur sa puissance totale P_{vehi} et par conséquent sur la puissance électrique de la pile

PEMFC, nous avons porté en Annexe D, dans les figures d.3 à d.7, l'évolution temporelle de la puissance P_{vehi} durant le cycle NEDC en fonctions de ces différents facteurs.

Nous pouvons constater ce qui suit :

- La masse du véhicule affecte beaucoup la demande en puissance durant les phases transitoires (ralentissement, accélération) et stationnaires à grande vitesse le long du cycle.
- La surface frontale du véhicule à une forte influence sur la puissance du véhicule durant la circulation de route à grande vitesse et est pratiquement nulle durant le trafic urbain.
- Le coefficient de traînée aérodynamique a le même impact sur la puissance du véhicule que celui de la surface frontale mais d'une manière moins intense.
- Le coefficient de résistance de roulage influe sur la puissance du véhicule surtout durant la circulation à vitesse constante ou l'accélération à partir d'une vitesse élevée.
- La déclivité du terrain influence énormément la puissance totale du véhicule sur l'ensemble du parcours, où une légère augmentation de la pente fait accroître la puissance requise par le véhicule, et nettement diminuer sa puissance récupérée aux ralentissements.

6. 2.3.3 Variations de la tension et du courant débité par la pile PEMFC durant le cycle

La figure ci-après illustre l'évolution temporelle de la tension et du courant débité par la pile au cours du cycle de conduite.

Concernant la tension de la pile, sa valeur est presque constante et égale à 264 V qui s'écarte d'environ 14 V de sa tension nominale désignée par la plaque signalétique du moteur électrique dotant la chaîne de traction du véhicule. Nous justifions cet écart, d'un côté par la forme de la courbe caractéristique de la pile PEMFC qui, à des charges électriques inférieures au courant nominal donne naissance à des surtensions dépassant ainsi le potentiel défini par son point de fonctionnement nominal, et d'autre côté par les erreurs qui peuvent être générées durant les calculs, à cause des approximations numériques.

Néanmoins quelques chutes de tension apparaissent pendant le cycle où le potentiel de la pile atteint, à la 1145^e seconde, sa plus basse valeur estimée à 240,89V et cela est dû aux appels de courant intenses enregistrés lors des fortes sollicitations du véhicule le long du parcours. Notons ici, qu'en cas de sous tension ou de surtension, c'est au convertisseur d'ajuster la tension de sortie de la pile PEMFC en fonction du système de traction.

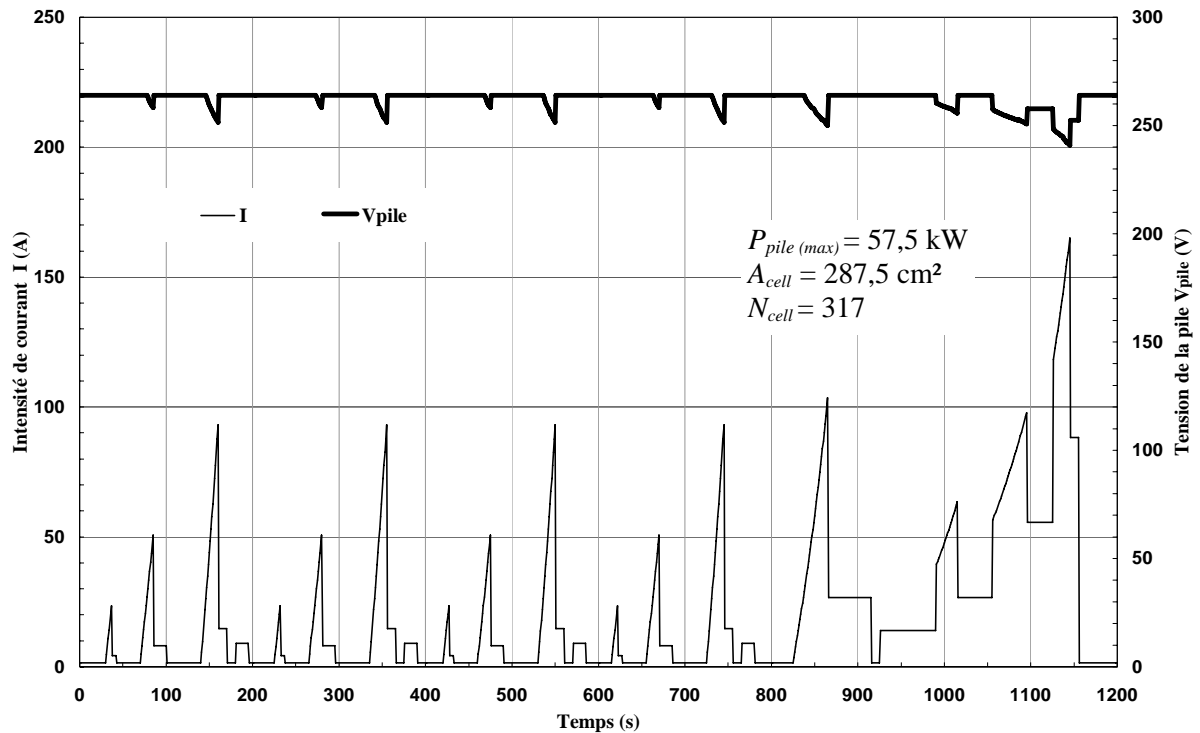


Figure 6. 24 : Evolution temporelle de la tension et du courant débité par la pile PEMFC durant le cycle de conduite.

Quant à l'intensité du courant électrique produit par la pile PEMFC, elle marque des fluctuations significatives qui s'étendent de 1,5 A observés aux périodes d'arrêt du véhicule à 165 A enregistrés à la fin de son accélération pour atteindre la vitesse maximale. Notons aussi que cette courbe ressemble parfaitement à celle de la puissance électrique délivrée par la pile pendant le cycle (Figure 6.23), car cette dernière n'est autre que le résultat du produit de la tension de la pile quasiment constante par l'intensité du courant débité.

6. 2.3.4 Evolutions du rendement du véhicule et de la consommation de carburant

L'évolution temporelle du rendement global du véhicule est donnée par le graphe 6.25, sur lequel nous pouvons voir que sa valeur oscille durant tout le cycle de conduite dans une plage comprise entre 32% et 38%, le rendement devient plus important durant les phases stationnaires du véhicule à faibles vitesses où il atteint son maximum évalué à 37,13% tandis que sa valeur diminue lors des périodes d'accélération comme celles du trafic de route avec un minimum de 32,62% observé à la 1145^e seconde.

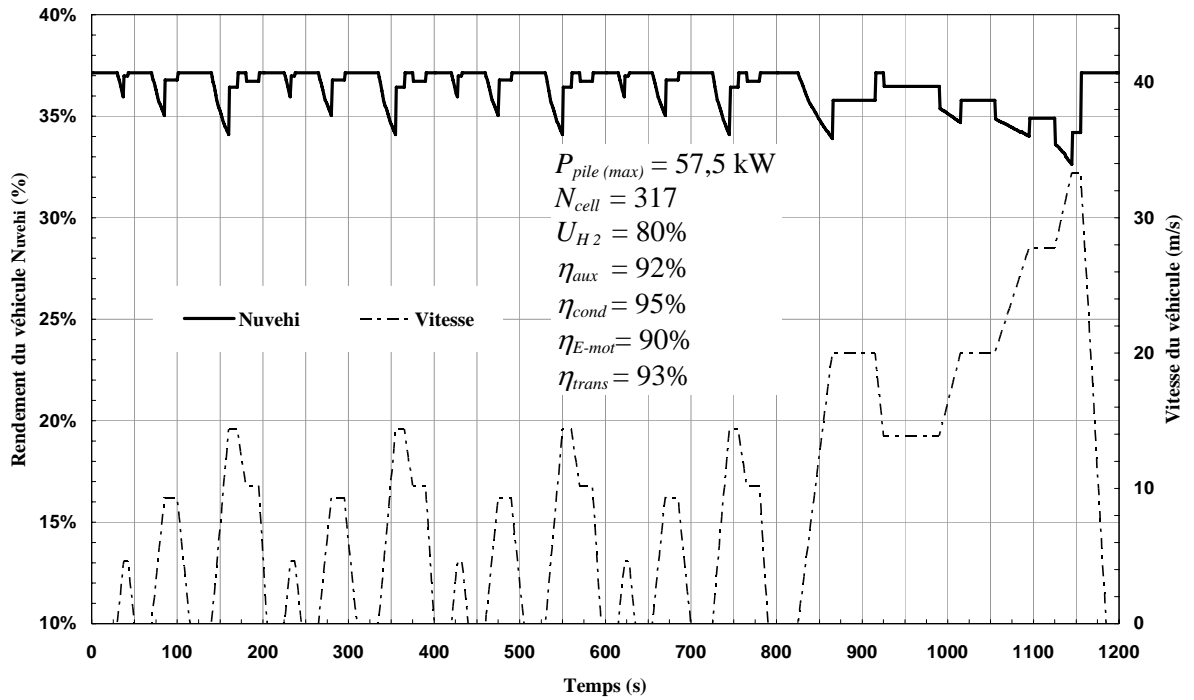


Figure 6. 25 : Variation du rendement global de véhicule le long du parcours de «NEDC».

La figure ci-dessous présente l'évolution en fonction du temps du débit massique de l'hydrogène pur utilisé par la pile durant le cycle de conduite «NEDC».

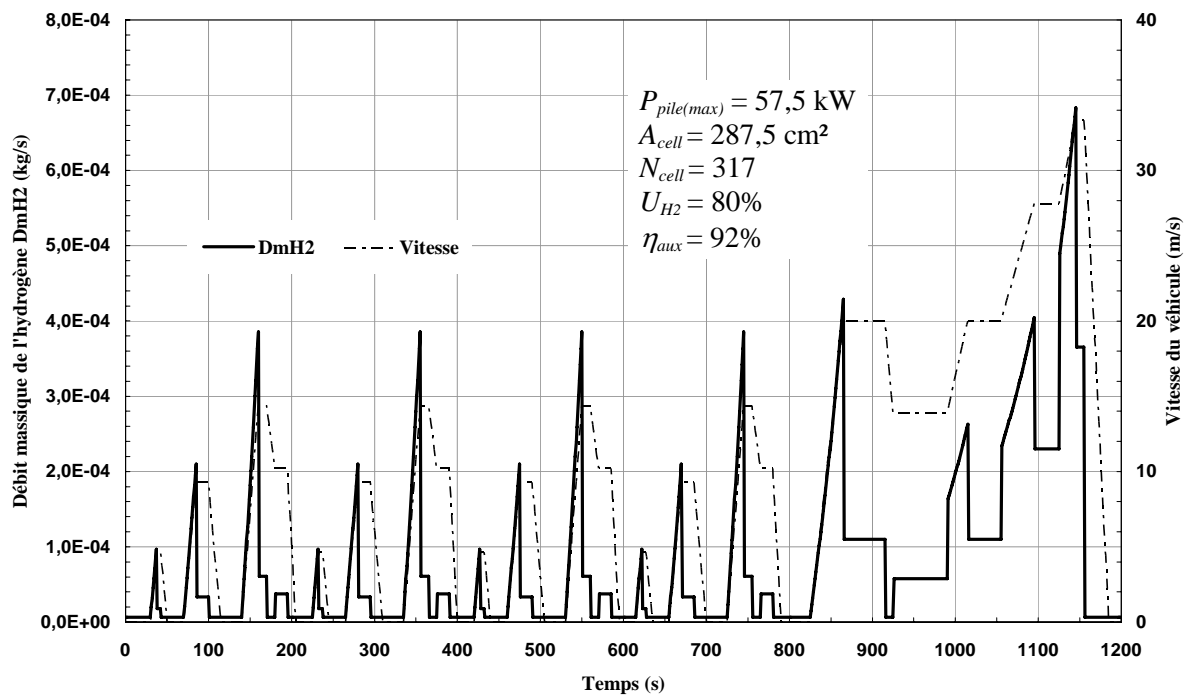


Figure 6. 26 : Variation temporelle du débit massique de l'hydrogène consommé au cours du cycle «NEDC».

Nous constatons que la consommation de ce carburant fluctue remarquablement où elle varie entre 6,27 mg/s à l'état immobile du véhicule jusqu'à la valeur de 683 mg/s au cours de la phase d'accélération effectuée à la 1145^e seconde et cela pour permettre à la pile PEMFC de débiter un courant plus intense et développer par conséquent une grande puissance électrique. En effet, la quantité du combustible usée est proportionnelle à l'état de charge de la pile (voir figure 6.17).

CONCLUSION

La filière des piles à combustible à électrolyte polymère solide (PEMFC) se présente comme un des générateurs d'énergie de traction du futur en matière de transport terrestre, avec de nombreux avantages potentiels : pas d'émissions polluantes, peu de bruit généré par le système pile, confort et souplesse de la traction électrique, et enfin une autonomie adaptée à une application urbaine. Cette technologie, au fort potentiel d'évolution, doit toutefois relever de nombreux challenges tant techniques qu'économiques avant d'être commercialisée en grande série. Le coût de la pile elle-même, l'intégration du système PAC dans un véhicule et le stockage d'hydrogène embarqué sont autant de points qui restent à surmonter.

La présente recherche est dédiée à l'étude du potentiel énergétique de l'intégration d'un système de pile à combustible PEMFC dans une chaîne de traction électrique d'architecture « Full power » d'un véhicule de taille moyenne.

La simulation du comportement électrique de la cellule PEMFC, a été établie par un modèle mathématique permettant de tracer sa courbe caractéristique, en considérant les différentes polarisations affectant son potentiel. L'analyse de l'influence des divers paramètres liés à la structure et aux conditions opératoires sur les performances de la cellule, nous a permis de lui spécifier un point de fonctionnement nominal.

Un modèle énergétique complet du véhicule à pile PEMFC de taille moyenne a été mis au point sous FORTRAN, pour être en mesure de dimensionner les organes essentiels de sa chaîne de traction électrique, à savoir la pile PEMFC et le réservoir de carburant. Il nous permet également, de calculer les estimations de consommation énergétique sur un cycle de conduite normalisé, et d'évaluer les performances routières du véhicule considéré.

Les résultats de cette recherche nous ont mené aux conclusions suivantes :

- Le potentiel de la cellule PEMFC présente des chutes de tension avec l'accroissement de la densité de courant de la charge qui lui est appliquée, et ces différentes polarisations surgissent à des intervalles de charge électrique distincts.

- Les performances électriques de la cellule, et par conséquent celles de la pile PEMFC, sont considérablement affectées par la variation des paramètres opératoires ; ainsi la tension, la densité de puissance et l'efficacité thermique sont nettement améliorés par l'accroissement de la pression totale cathodique, de la température de fonctionnement, et de l'humidité de la membrane et, restent peu sensibles à la variation de la pression partielle de l'hydrogène, cependant elles sont fortement atténuées par l'augmentation de l'épaisseur d'électrolyte.
- Le point de fonctionnement nominal de la cellule PEMFC est défini par une tension électrique de 0,79V à la densité de courant de 0,8A/cm², ce qui lui permet de disposer d'une densité de puissance totale de 0,63 W/cm² et d'un rendement thermique avoisinant les 56%.
- L'insertion du système complet de pile PEMFC dans la chaîne de motorisation d'un véhicule de taille moyenne a généré, entre autres, les spécifications électriques de la pile PEMFC dotée d'une puissance maximale de 57,5 kW en opérant sous une tension de 250V avec un rendement global du système PAC estimé à 39,18%.
- La pile PEMFC répond parfaitement à l'ensemble des sollicitations fluctuantes imposées par les régimes de conduite en profil urbain et routier du cycle normalisé. Quant au combustible, sa consommation suit fidèlement l'état de marche de la pile PEMFC.
- Le véhicule propulsé par pile à combustible PEMFC réalise de bonnes performances routières avec un rendement global du réservoir à la roue dépassant les 32% et une consommation spécifique d'hydrogène comprimé à 150 atm de 74,8 g/kW.h.

Perspectives

Vu les multiples atouts, tels que la récupération de l'énergie cinétique, que peut offrir l'architecture hybride pour les véhicules à piles à combustible, il nous semble très intéressant de poursuivre cette étude par l'intégration d'un module mathématique approprié à la stratégie de gestion d'un dispositif de puissance maximale dans la plateforme numérique que nous avons développée.

Par ailleurs, pour pouvoir évaluer les potentialités locales accordées par de cette technologie, Il est souhaitable d'étudier les performances routières du véhicule électrique hybride, dans un cycle de conduite basé sur des données d'un parcours algérien.

APPENDICE A

LISTE DES SYMBOLES ET DES ABREVIATIONS

A_{cell}	Aire de la surface électroactive	(cm ²)
A_v	Surface frontale du véhicule	(m ²)
$A_{CELLtot}$	Surface totale requise de cellule par pile	(cm ²)
AC	Alternate Current	-
$ADVISOR$	Advanced Vehicle Simulator	-
AFC	Alkaline Fuel Cell	-
$AIST$	Agency of Industrial Science and Technology	-
ANL	Argonne National Laboratory	-
APU	Auxiliary Power Unit	-
ATR	Autothermal Reforming	-
B_r	Résistance de freinage	(N)
B_{carb}	Consommation de carburant par distance parcourue	(g.m ⁻¹)
B	Premier coefficient du viriel à la température standard	(m ³ /mole)
C_p	Chaleur spécifique	(J/kg.K)
C_d	Coefficient de traînée aérodynamique	-
$CAFE$	Corporate Average Fuel Economy	-
CC	Courant Continu	-
CFD	Computational Fluid Dynamics	-
$CGH2$	Compressed gas of hydrogen	-
CSR	Catalytic Steam Reforming	-
DC	Direct Current	-
$DMFC$	Direct Methanol Fuel Cell	-
E_{vehi}	Autonomie du véhicule	(km/l)
F	Constante de Faraday	(C/mole)
F_{aero}	Résistance de l'air	(N)
F_{roul}	Résistance de roulage	(N)
$FC-HEV$	Fuel Cell Hybrid Electric Vehicle	-
$FHDS$	Federal Highway Driving Schedule	-
$FTP75$	Federal Test Procedure	-
$FUDS$	Federal Urban Driving Schedule	-
G_r	Energie libre de GIBBS	(J)
$GCTool$	General Computational Toolkit	-
GNF	Graphite Nano-Fibers	-

GtL	Gaz to Liquids	-
H_r	Enthalpie de la réaction	(J/K)
HEV	Hybrid Electric Vehicle	-
I	Intensité du courant de la cellule élémentaire	(A)
$IGCC$	Integrated Gasification Combined Cycle	-
L_v	Chaleur latente de vaporisation d'eau	(J/kg)
L_{vehi}	Distance parcourue avec un seul plein (Gamme de véhicule)	(m)
$LH2$	Liquid hydrogen	-
M_{H2O}	Masse molaire de la molécule d'eau	(kg/mole)
M_v	Masse totale du véhicule	(kg)
$MCFC$	Molten Carbonate Fuel Cell	-
MCI	Moteur à Combustion Interne	-
MEA	Membrane Electrode Assembly	-
$MITI$	Ministry for International Trade and Industry	-
$MWNT$	Multiwalled Nanotube	-
N_{cell}	Nombre total de cellules en série dans la pile	-
$N_{cell/pile}$	Nombre de cellules par pile	-
$NECAR$	New Electric Car	-
$NEDC$	New European Driving Cycle	-
$NREL$	National Renewable Energy Laboratory	-
P_{perdue}	Puissance calorifique totale perdue	(W)
OCV	Open Circuit Voltage	-
P	Pression de gaz	(atm)
P_0	Pression standard	(atm)
P_x	Pression partielle du gaz x	(atm)
P_{ca}	Pression totale à la cathode	(bar)
P_{sat}	Pression de saturation de vapeur	(bar)
P_{sat}^0	Pression de saturation au point de référence	(Pa)
P_{ca}^{moy}	Pression totale moyenne de l'air à la cathode	(atm)
P_{ca}^{In}	Pression totale de l'air à l'entrée de la cathode	(atm)
P_{ca}^{Out}	Pression totale de l'air à la sortie de la cathode	(atm)
P_{An}	Pression totale à l'anode de la cellule	(atm)
P_{sat}	Pression de saturation de vapeur	(atm)
P_{H_2comp}	Pression de gaz d'hydrogène comprimé	(Pa)
P_{pile}	Puissance électrique brute de la pile	(W)
P_{cell}	Puissance électrique de la cellule	(W)
PCS_{H_2}	Pouvoir calorifique supérieur de l'hydrogène	(J/kg)
$PCS_{combust}$	Pouvoir calorifique supérieur du carburant	(J/kg)
P_{vehi}	Puissance totale exigée par le véhicule	(W)

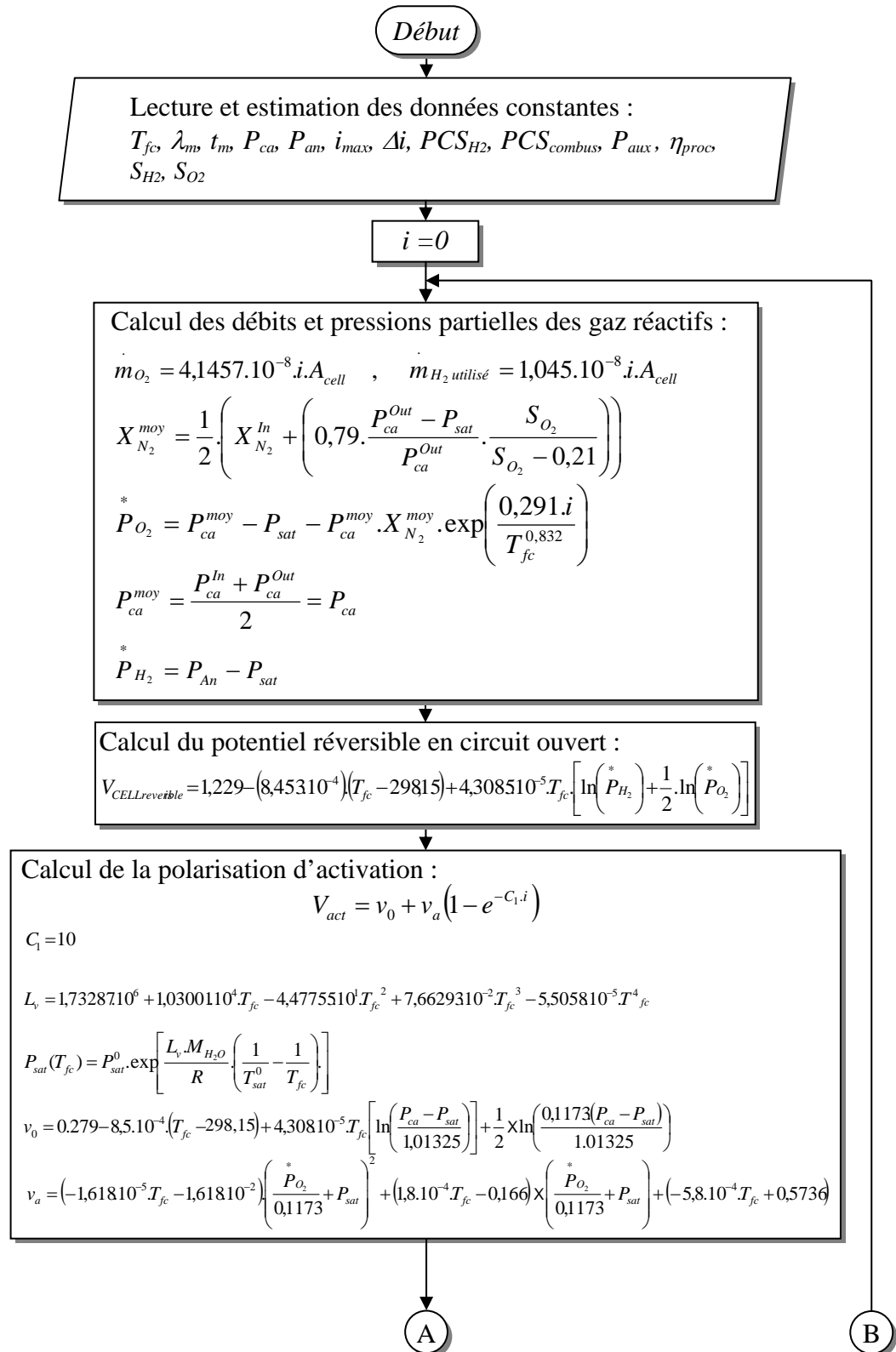
P_{syst}	Puissance nette du système pile à combustible	(W)
P_{aux}	Consommation auxiliaire de la pile PEMFC	(W)
$P_{aux-vehi}$	Puissance électrique des auxiliaires du véhicule	(W)
P_{accel}	Puissance d'accélération du véhicule	(W)
P_{pente}	Puissance d'ascension de pente	(W)
P_{roue}	Puissance propulsive nécessaire à la roue	(W)
PAC	Pile à combustible	-
$PAFC$	Phosphoric Acid Fuel Cell	-
$PCFC$	Protonic Ceramic Fuel Cell	-
PCI	Pouvoir Calorifique Inférieur	-
PCS	Pouvoir Calorifique Supérieur	-
$PEMFC$	Proton Exchange Membrane Fuel Cell	-
$PNGV$	Partnership for a New Generation Vehicle	-
POX	Partial Oxydation	-
$PROX$	Preferential Oxydation	-
PSA	Pressure Swing Adsorption	-
PTS	Pression et Température Standard	-
R	Constante universelle des gaz parfaits	(J/K.mole)
R_{ohm}	Résistance ohmique	(Ω)
RFC	Reversible Fuel Cell	-
S_r	Entropie de la réaction	(J/K)
S_g	Rapport de stoechiométrie du gaz g	-
SOC	State Of Charge	-
$SOFC$	Solid Oxide Fuel Cell	-
$SULEV$	Super Ultra Low Emission Vehicle	-
$SWNT$	Single Walled Nanotube	-
T_{fc}	Température de la cellule	(K)
T_{ref}	Température de référence	(K)
T_{sat}^0	Température de saturation au point de référence	(K)
TDD	Transition Déflagration Détonation	-
U_g	Utilisation du gaz g	(%)
$ULEV$	Ultra Low Emission Vehicle	-
V_{cell}	Tension de fonctionnement de la cellule	(V)
V_{oc}	Tension théorique en circuit ouvert	(V)
V_{Nernst}	Potentiel théorique maximum de NERNST à la PTS	(V)
$V_{CELLreversible}$	Potentiel théorique réversible de la cellule	(V)
V_{act}	Polarisation d'activation	(V)
V_{ohm}	Polarisation ohmique	(V)
V_{conc}	Polarisation de diffusion (concentration)	(V)

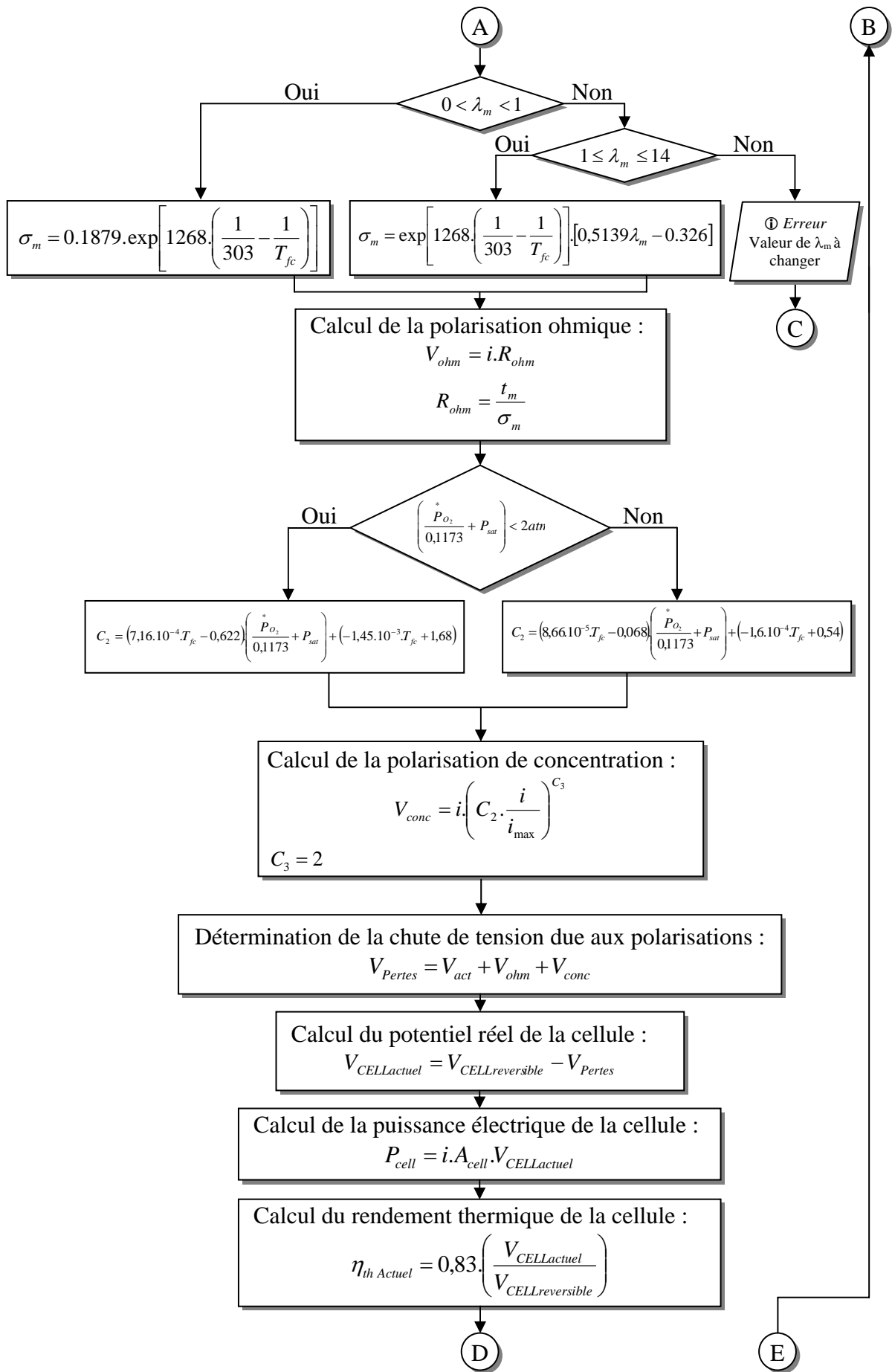
$V_{CELLactuel}$	Tension réelle de la cellule PEMFC	(V)
V_{pile}	Tension de la pile à combustible	(V)
V^0	Potentiel réversible de la cellule à la PTS	(V)
$X_{N_2}^{moy}$	Fraction molaire moyenne de nitrogène	-
$X_{N_2}^{In}$	Fraction molaire de nitrogène à l'entrée de la cathode	-
ZAFC	Zinc Air Fuel Cell	-
ZEV	Zero Emissions Vehicle	-
a	Activité de la substance	-
b_{carb}	Consommation spécifique de carburant	(g. kWh ⁻¹)
d_{cell}	Epaisseur de la pile PEMFC	(cm)
f	Coefficient de résistance de roulage	-
g	Accélération de la pesanteur	(m/s ²)
g_f	Energie libre de formation de Gibbs par mole	(J/mole)
h_{pile}	Hauteur de la pile à combustible	(cm)
h_f	Enthalpie de formation	(J/mole)
i	Densité de courant électrique	(A/cm ²)
l_{pile}	Longueur de pile PEMFC	(cm)
$\dot{m}_{Air\ admis}$	Débit massique d'air total admis	(kg/s)
$\dot{m}_{H_2\ admis}$	Débit massique d'hydrogène admis	(kg/s)
$\dot{m}_{combust}$	Débit massique du combustible primaire	(kg/s)
m_{veh}	Masse du véhicule	(kg)
m_{charge}	Masse de charge additionnelle	(kg)
m_{co}	Masse de corps du véhicule	(kg)
m_{ch}	Masse du châssis	(kg)
m_{ct}	Masse de la chaîne de traction	(kg)
$m_{reservH2}$	Masse totale de l'hydrogène et de son réservoir	(kg)
n_{H2}	Nombre de moles de l'hydrogène	(moles)
ppm	Particules par million	-
t_m	Epaisseur de la membrane	(cm)
tep	Tonnes d'équivalent pétrole	-
v	Vitesse du véhicule	(m/s)
v_{moy}	Vitesse moyenne du véhicule	(m/s)
V_{pile}	Volume total de la pile PEMFC	(cm ³)
$V_{H2\ comp}$	Volume de gaz d'hydrogène comprimé	(m ³)
w_{pile}	Largeur de la pile à combustible	(cm)
α_{active}	Rapport du secteur actif à l'aire totale de la plaque bipolaire	(%)
$\beta_{H2\ comp}$	Rapport de la masse d'hydrogène à la masse du réservoir plein	(kg _{H2} /kg _{cylindre})
η_{th}	Rendement thermique de la cellule PEMFC	(%)
η_{Elect}	Rendement électrique de la cellule PEMFC	(%)

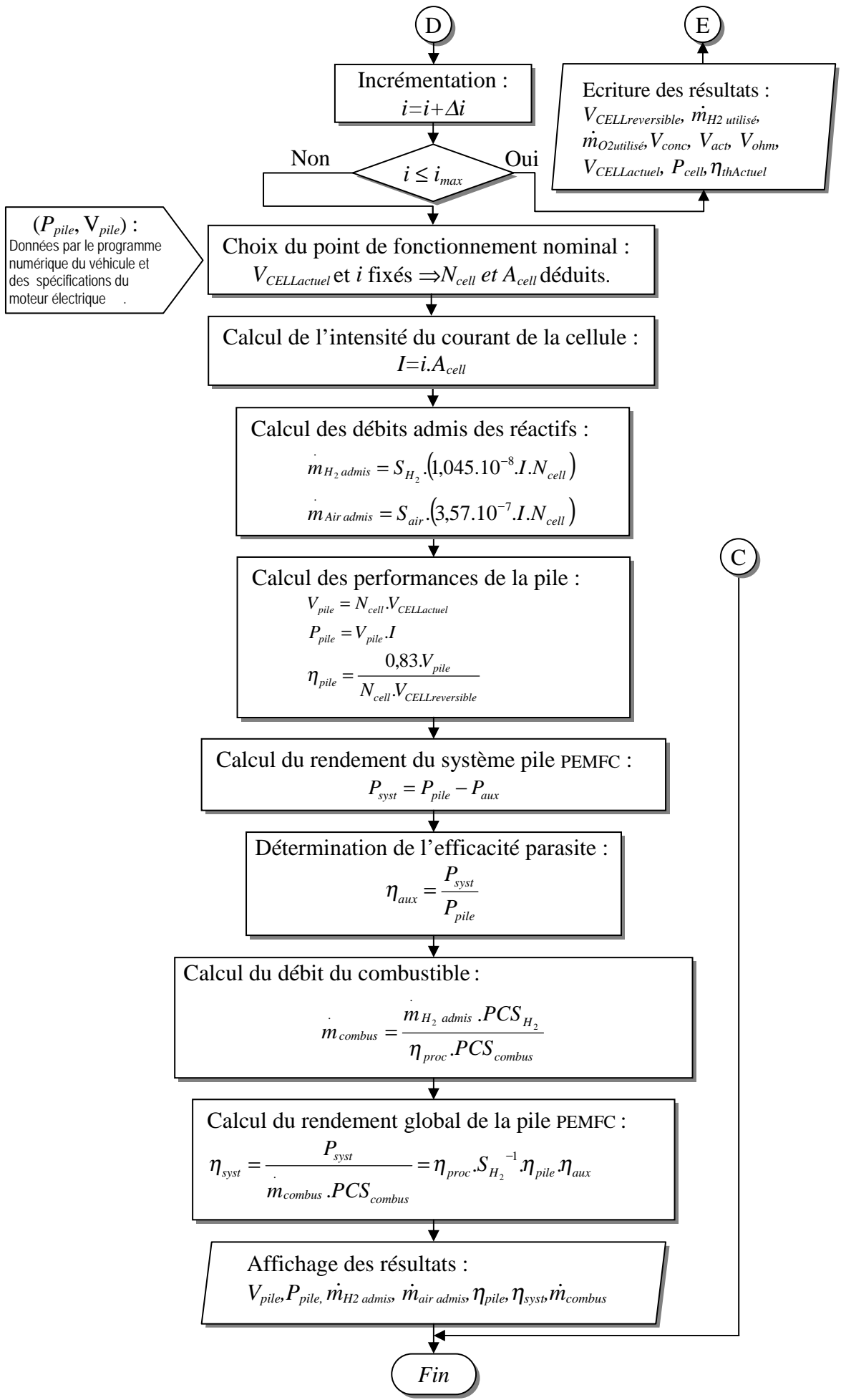
η_{pile}	Rendement de la pile à combustible	(%)
η_{proc}	Rendement du processus de production de H ₂	(%)
η_{aux}	Efficacité parasite	(%)
η_{trans}	Rendement de la transmission	(%)
η_{cond}	Efficacité du convertisseur avec onduleur	(%)
η_{E-mot}	Efficacité du moteur électrique	(%)
η_{trans}	Efficacité de la transmission	(%)
η_{vehi}	Rendement global du véhicule	(%)
λ_m	Teneur en eau de la membrane	(mole _{H2O} /mole _{SO3})
θ	Angle d'inclinaison de la route	(rad)
ρ	Densité de l'air	(kg/m ³)
σ_m	Conductivité de la membrane	($\Omega.cm$) ⁻¹
Δg_f	Variation d'énergie libre de formation de Gibbs par mole	(J/mole)
Δs_f	Variation d'entropie molaire de formation à la PTS	(J/mole.K)

APPENDICE B

ORGANIGRAMME DU CODE DE CALCUL « PEMFC. FOR »

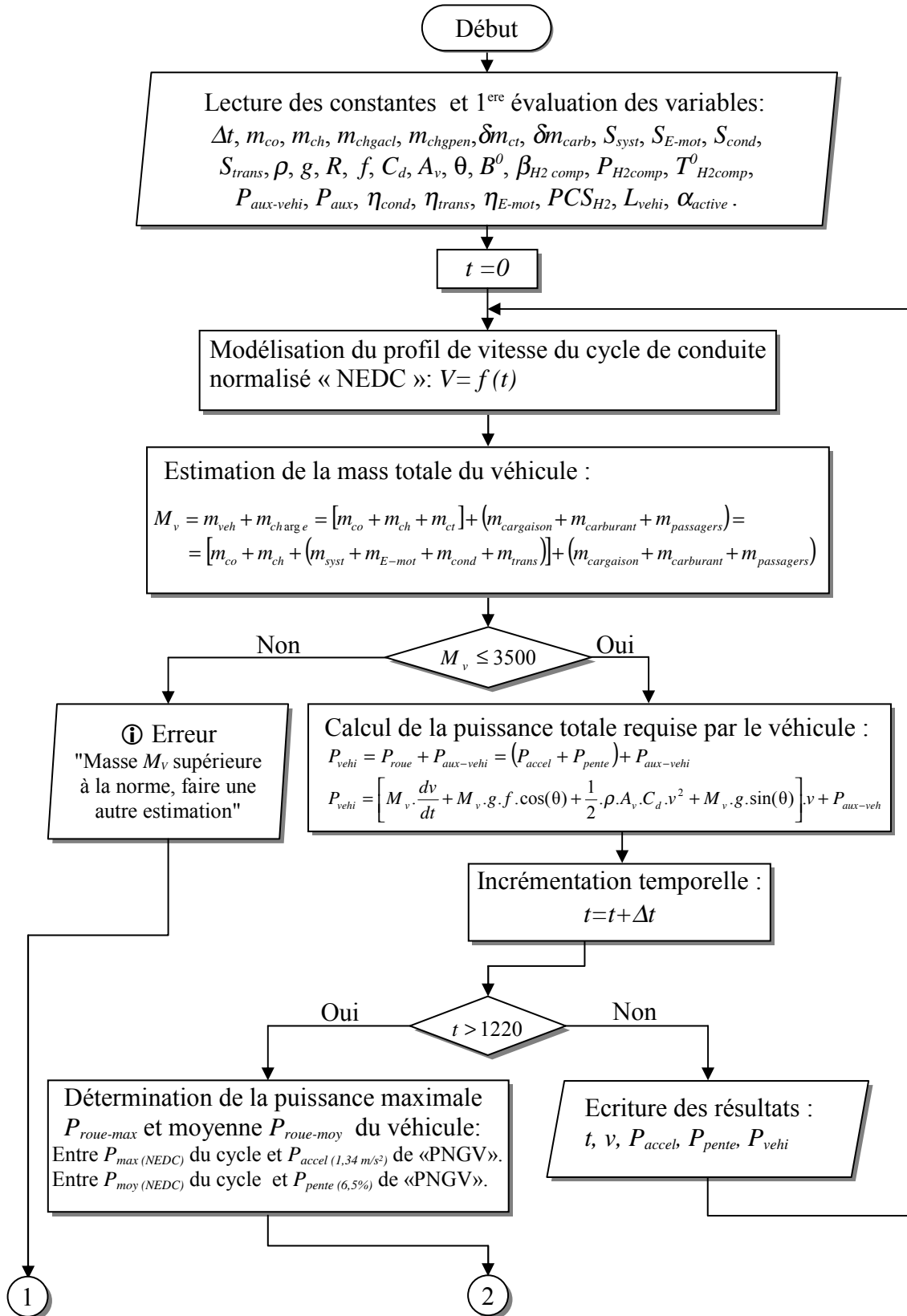


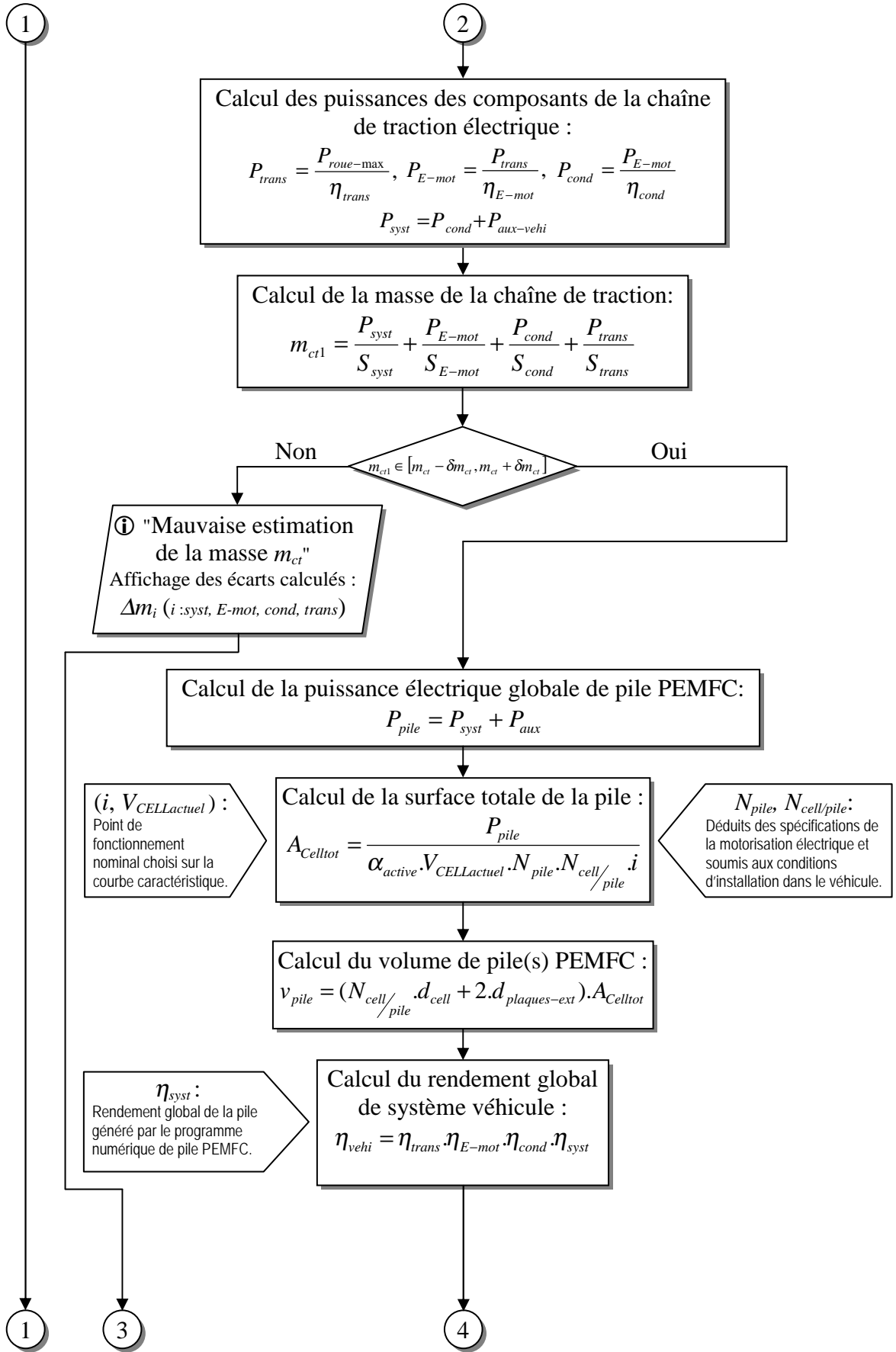


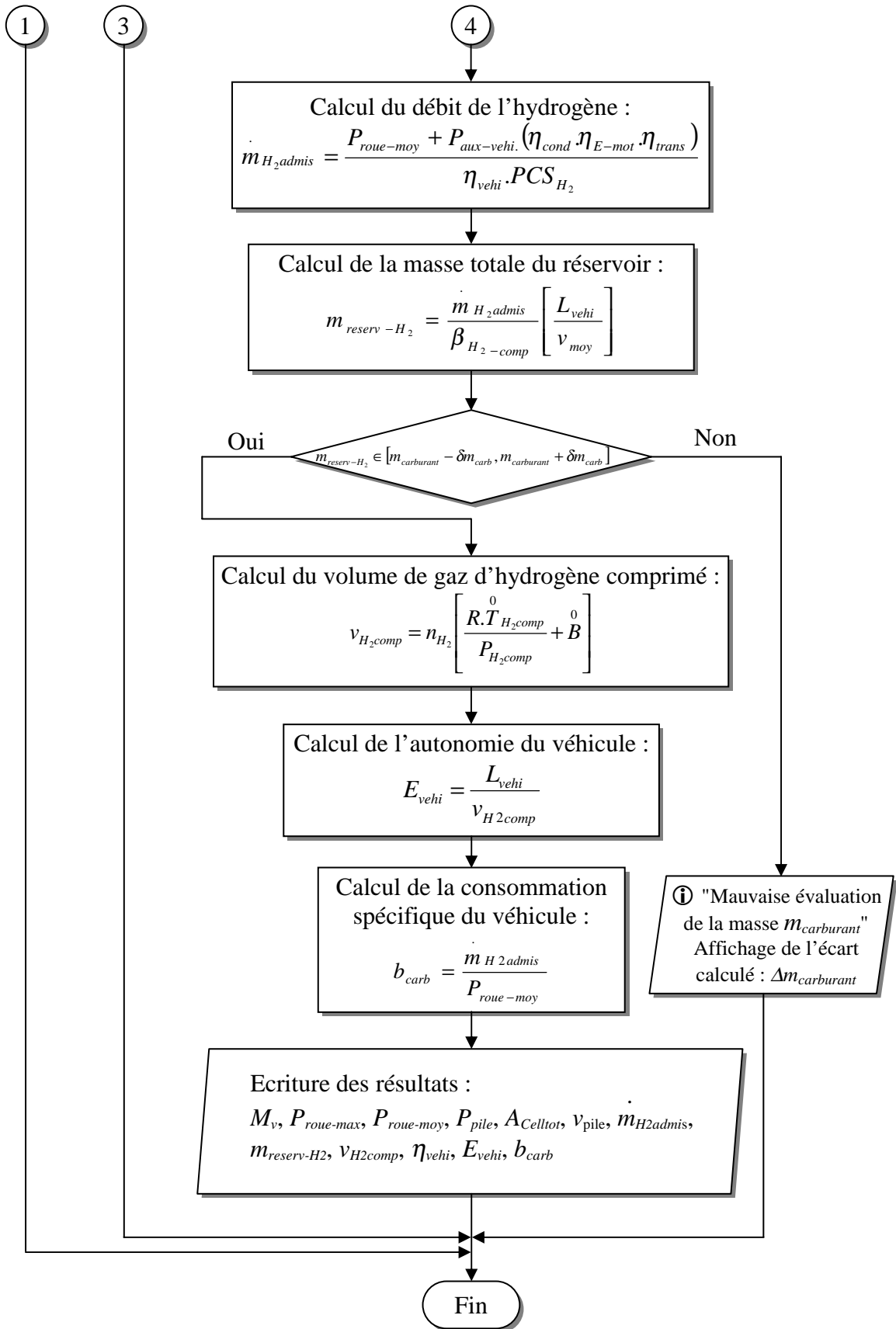


APPENDICE C

ORGANIGRAMME DU PROGRAMME « VEHICULE .FOR »







APPENDICE D

RECAPITULATIF DES DONNEES ET DES RESULTATS

Tableau d. 1: Paramètres utilisés dans la modélisation de pile PEMFC et du véhicule à PAC.

DONNEE	VALEUR NUMERIQUE
<u>Propriétés de la cellule élémentaire</u>	
Epaisseur de l'électrolyte, (t_m)	0,0200 cm
Epaisseur de la plaque bipolaire	0,0254 cm
Epaisseur de la zone catalytique	0,0010 cm
Epaisseur des canaux de gaz	0,20 cm
Epaisseur de la plaque d'extrémité, ($d_{\text{plaques-ext}}$)	1,50 cm
Température de la cellule, (T_{fc})	353,15 K
Teneur en eau de la membrane, (λ_m)	12,6 mole _{H₂O} /mole _{SO₃⁻}
Rapport du secteur actif à l'aire totale de la plaque bipolaire, (α_{active})	83 %
<u>Performances et caractéristiques du véhicule</u>	
Masse du corps et du châssis, ($m_{co} + m_{ch}$)	876 kg
Surface frontale, (A_v)	2,09 m ²
Coefficient de résistance de roulage, (f)	0,008
Coefficient de traînée aérodynamique, (C_d)	0,27
Vitesse moyenne, (v_{moy})	25 m/s
Gamme du véhicule, (L_{vehi})	360 km
Puissance électrique des auxiliaires, ($P_{\text{aux-vehi}}$)	400 W
Puissance spécifique de la transmission, (S_{trans})	1,625 kW/kg
Puissance spécifique du moteur électrique, ($S_{E\text{-mot}}$)	0,400 kW/kg
Puissance spécifique de l'onduleur avec convertisseur, (S_{cond})	0,560 kW/kg
Puissance spécifique du système pile à combustible, (S_{sys})	0,250 kW/kg
Rendement de la transmission mécanique, (η_{trans})	93 %
Efficacité du moteur électrique, ($\eta_{E\text{-mot}}$)	90 %
Rendement de l'onduleur avec convertisseur, (η_{cond})	95 %
Efficacité parasite de la pile PEMFC, (η_{aux})	92 %
<u>Stockage et consommation de carburant</u>	
Pression partielle de l'hydrogène, ($P_{H_2}^*$)	1 atm
Pression totale de l'air à la cathode, (P_{ca})	2 bars
Utilisation de l'hydrogène, (U_{H_2})	80 %
Stoechiométrie de l'air, (S_{Air})	2
Rendement de conversion du méthanol (vaporeformeur), ($\eta_{\text{proc(Méthanol)}}$)	62 %
Rendement de conversion de l'essence (réacteur POX), ($\eta_{\text{proc(Essence)}}$)	69,4 %

Tableau d. 2: Résultats numériques générés par les deux modèles de simulation.

PARAMETRE	VALEUR
<u>Propriétés de la cellule élémentaire</u>	
Potentiel au point de fonctionnement nominal, (V_{pf})	0,79 V
Densité de courant au point de fonctionnement nominal, (i_{pf})	0,80 A/cm ²
Secteur actif de la cellule, (A_{cell})	287,5 cm ²
Surface totale de la cellule, ($A_{celltot}$)	345,8 cm ²
<u>Caractéristiques du système pile à combustible PEMFC</u>	
Nombre total des cellules dans le stack, (N_{cell})	317
Tension aux bornes des électrodes, (V_{pile})	250 V
Intensité du courant débité, (I)	230 A
Surface entière nécessaire de la pile, ($A_{piletot}$)	109615,7 cm ²
Volume total de la pile, (v_{pile})	52863,7 cm ³
Puissance électrique brute délivrée par la pile à $P_{roue-max}$, ($P_{pile-max}$)	57,48 kW
Puissance électrique des auxiliaires à $P_{roue-max}$, ($P_{aux-max}$)	4,6 kW
Puissance électrique nette du système pile à $P_{roue-max}$, ($P_{syst-max}$)	52,88 kW
Puissance électrique nette du système pile à $P_{roue-moy}$, ($P_{syst-moy}$)	8,63 kW
Rendement global du système pile à $P_{roue-max}$, ($\eta_{syst-max}$)	39,18 %
Rendement global du système pile à $P_{roue-moy}$, ($\eta_{syst-moy}$)	44,74 %
<u>Spécifications de la motorisation électrique</u>	
Masse de la transmission mécanique, (m_{trans})	27,61 kg
Masse du moteur électrique, (m_{E-mot})	124,64 kg
Masse de l'onduleur avec convertisseur, (m_{cond})	93,72 kg
Masse du système pile PEMFC, (m_{syst})	211,53 kg
Masse de la chaîne de traction électrique, (m_{ct})	457,50 kg
Masse brute du réservoir rempli de CGH ₂ , ($m_{reservH2}$)	65,25 kg
Puissance mécanique au train d'entraînement, (P_{trans})	44,87 kW
Puissance électrique du moteur, (P_{E-mot})	49,86 kW
Puissance électrique du convertisseur et onduleur, (P_{cond})	52,48 kW
Puissance électrique nette du système pile, (P_{syst})	52,88 kW
<u>Performances et caractéristiques du véhicule</u>	
Masse totale du véhicule à PAC basée sur de l'hydrogène pur, (M_v)	1498,74 kg
Puissance moyenne demandée à la roue du véhicule, ($P_{roue-moy}$)	6,54 kW
Puissance propulsive maximum requise par le véhicule, ($P_{roue-max}$)	41,73 kW
Rendement global du véhicule à $P_{roue-moy}$, ($\eta_{vehi-moy}$)	35,58 %
Rendement global du véhicule à $P_{roue-max}$, ($\eta_{vehi-max}$)	31,15 %
Débit massique consommé de H ₂ à $P_{roue-moy}$, ($\dot{m}_{H2\ admis-moy}$)	1,36.10 ⁻⁴ kg / s
Débit massique consommé de H ₂ à $P_{roue-max}$, ($\dot{m}_{H2\ admis-max}$)	9,52.10 ⁻⁴ kg / s
Puissance spécifique développée par le véhicule	27,82 kW/ 1000 kg
Consommation spécifique de CGH ₂ (à 150 atm), (b_{H2})	74,80 g / kW.h
Consommation de CGH ₂ par distance parcourue, (B_{H2})	5,44.10 ⁻³ g/m
Autonomie du véhicule à PAC alimentée en CGH ₂ , ($E_{vehi-H2}$)	2,25 km / l
<u>Stockage et consommation de carburant</u>	
Volume du réservoir de CGH ₂ (à 150 atm), ($v_{H2\ comp}$)	0,160 m ³
Masse de l'hydrogène pur usé le long du cycle NEDC, ($m_{H2\ admis}$)	9,57.10 ⁻² kg
Masse de l'essence consommée durant le cycle NEDC, ($m_{essence}$)	4,26.10 ⁻¹ kg
Masse du méthanol consommé au cours du cycle NEDC, ($m_{méthanol}$)	9,65.10 ⁻¹ kg
Volume d'air total consommé pendant le NEDC	4,08 m ³
Performance volumique de stockage du CGH ₂	12,24 g / l de réservoir
Performance massique de stockage du CGH ₂	30 g / kg de réservoir
CGH ₂ usé durant le NEDC / Réserve totale de carburant	4,9 %

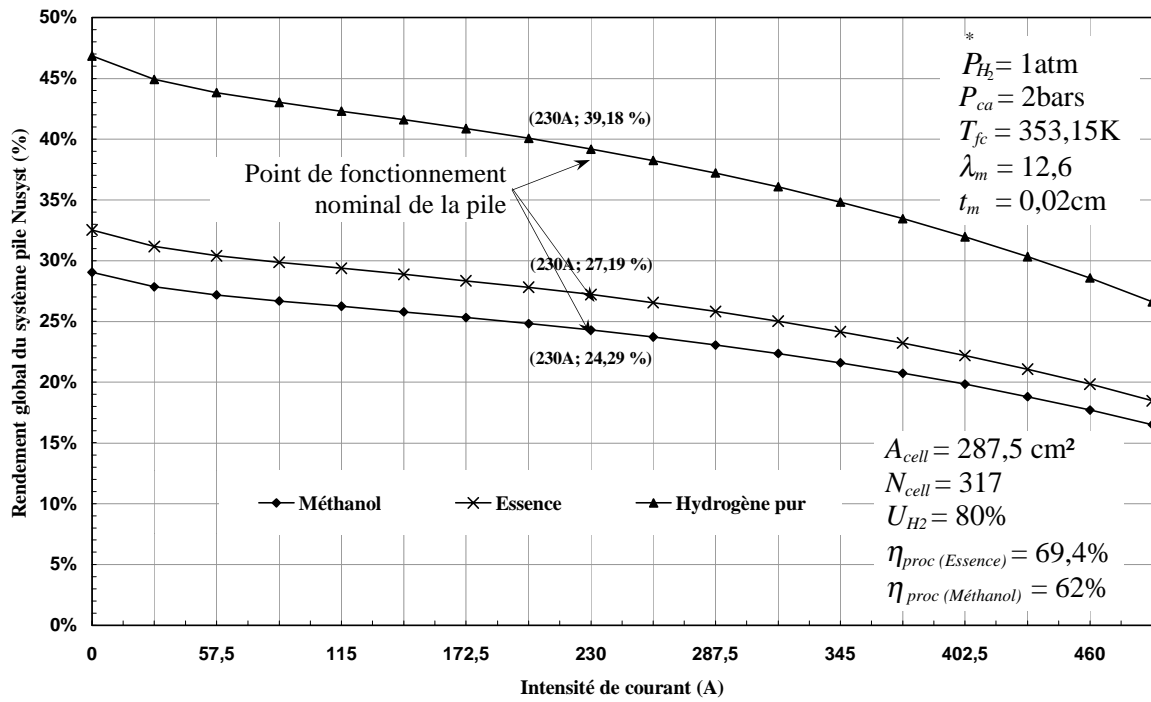


Figure d. 1: Variation du rendement global du système pile PEMFC en fonction du courant pour trois types de carburant.

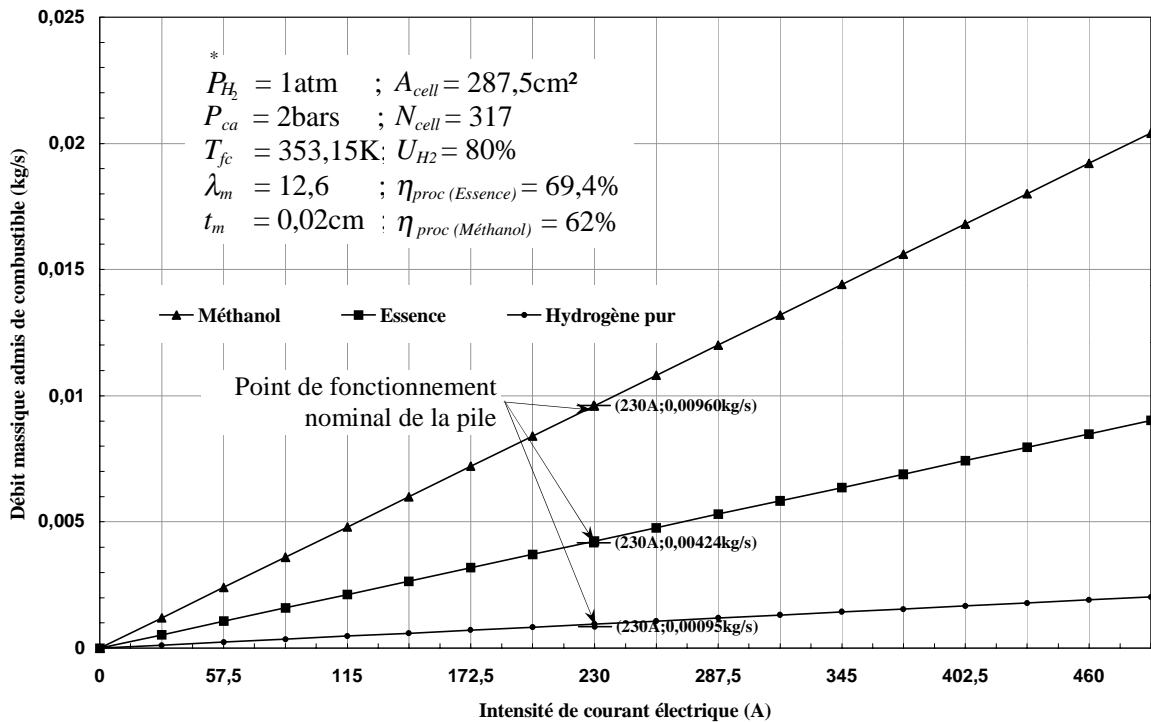


Figure d. 2 : Variation du débit admis de trois combustibles en fonction du courant tiré de la pile PEMFC.

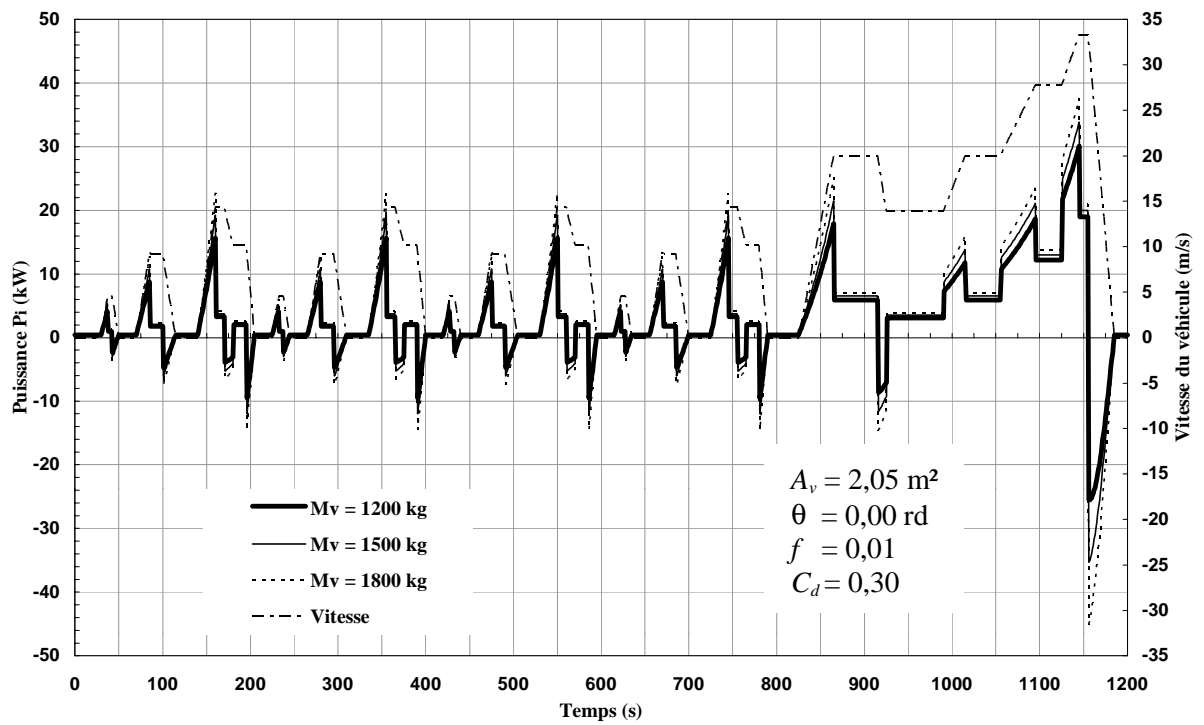


Figure d. 3 : Influence de la masse globale du véhicule « M_v » sur la puissance totale exigée durant le cycle de conduite de «NEDC».

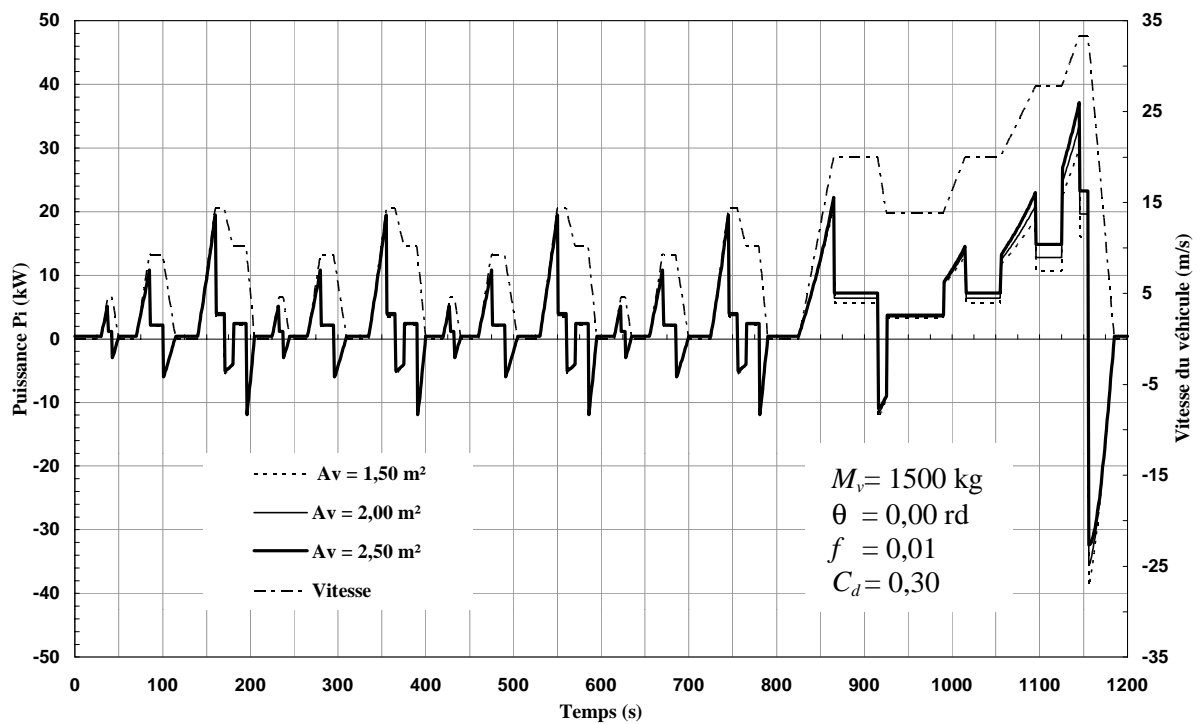


Figure d. 4 : Influence de la surface frontale du véhicule « A_v » sur sa puissance totale.

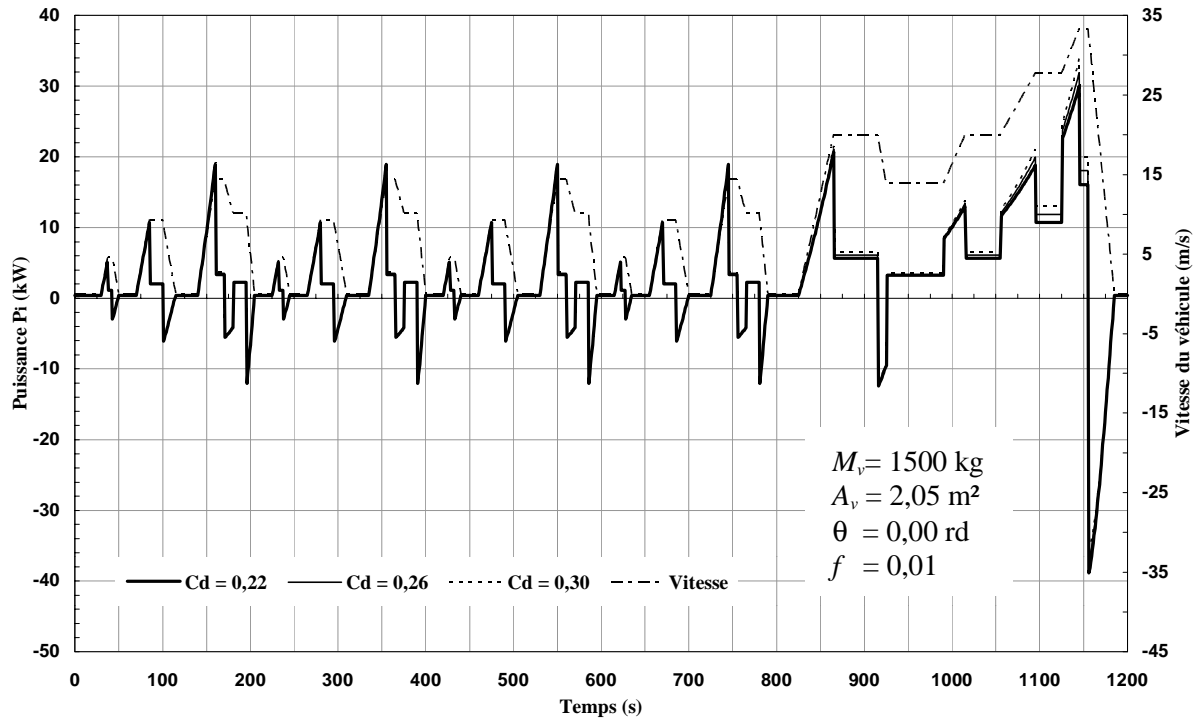


Figure d. 5 : Influence du coefficient de traînée aérodynamique «Cd» sur la puissance requise par le véhicule.

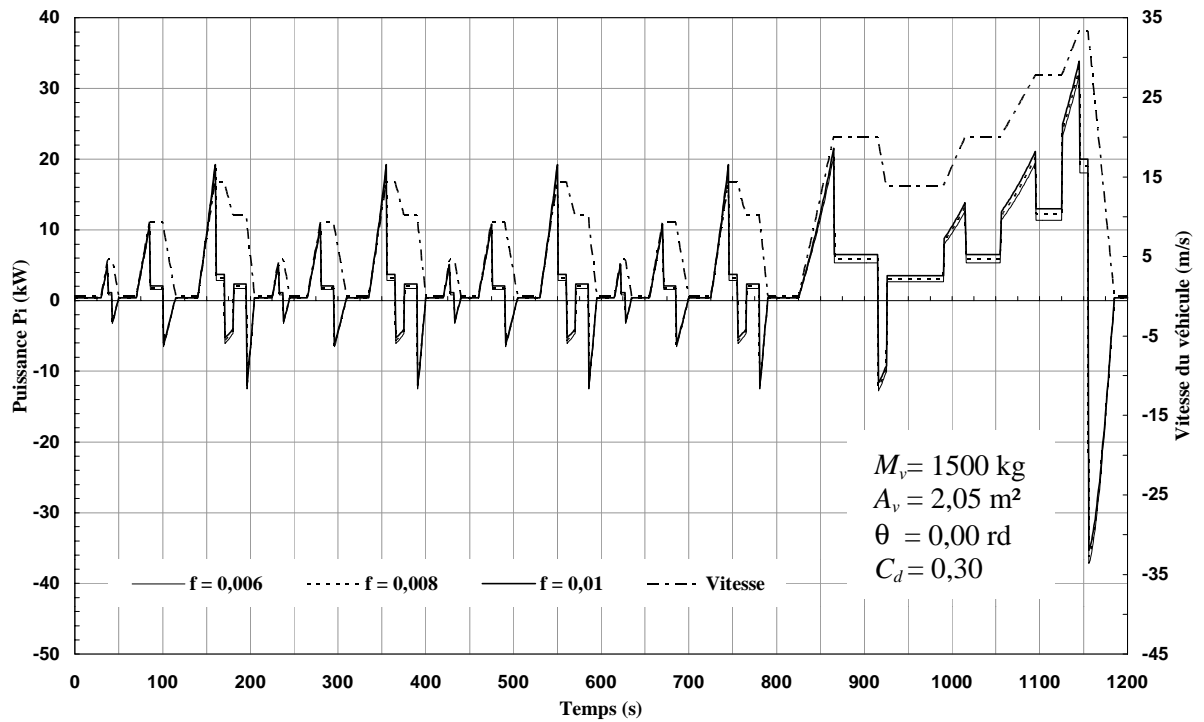


Figure d. 6 : Influence du coefficient de résistance de roulage «f» sur la puissance du véhicule.

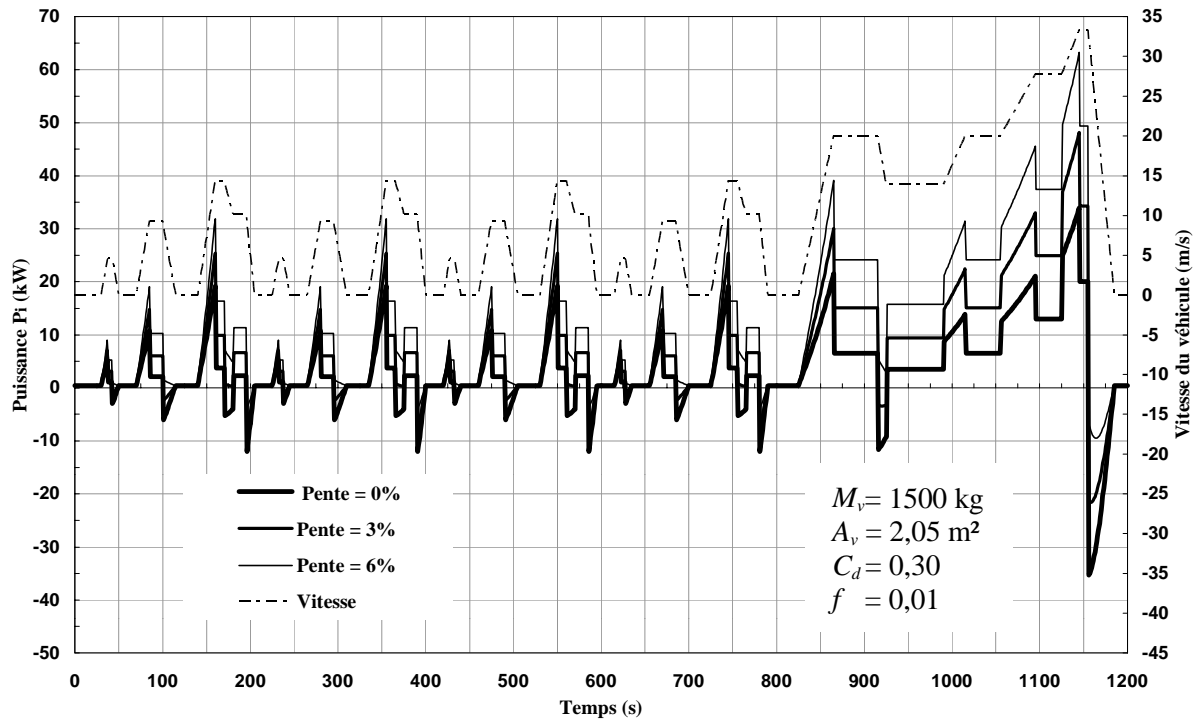


Figure d. 7 : Effet de la variation de déclivité de la route sur la puissance totale demandée par le véhicule.

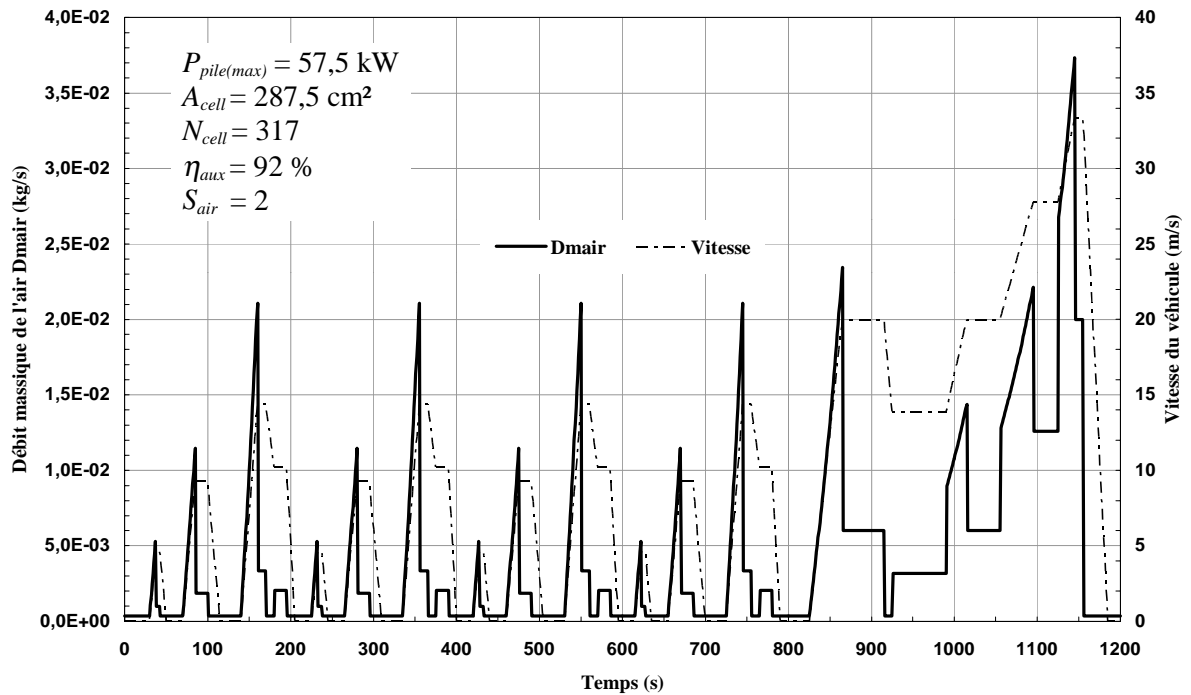


Figure d. 8 : Evolution temporelle du débit massique de l'air durant le cycle «NEDC».

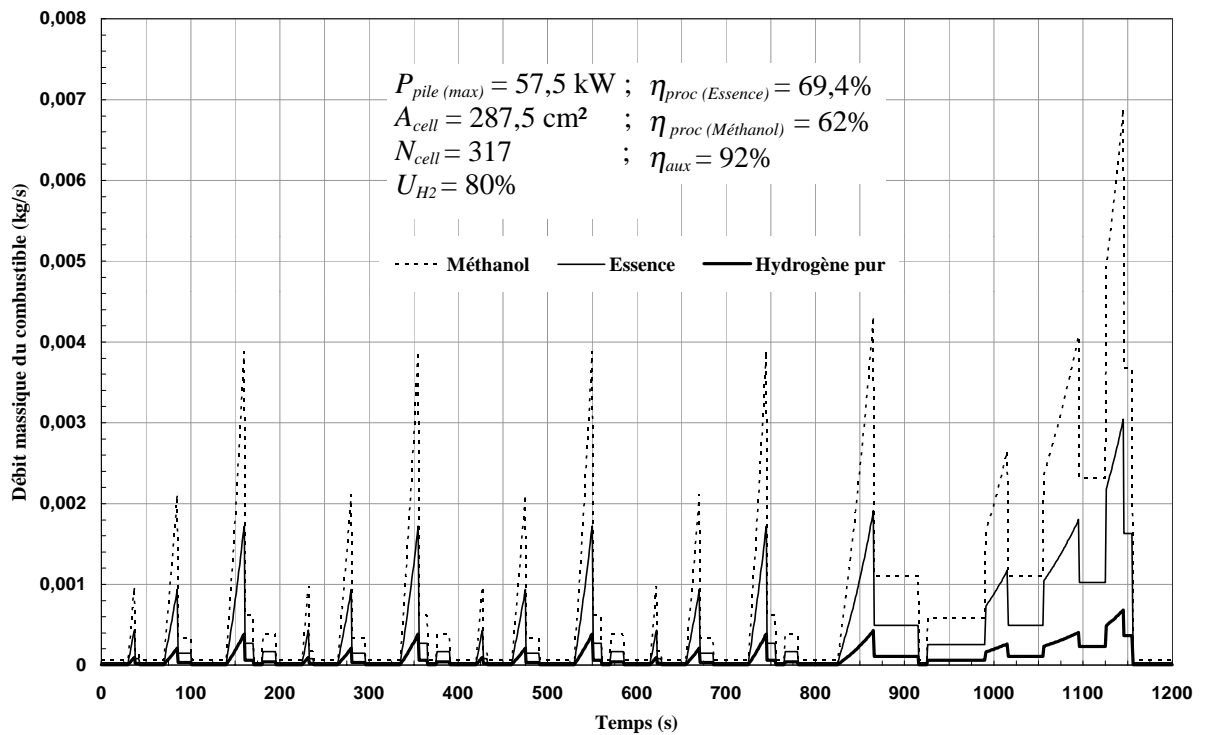


Figure d. 9 : Variation temporelle du débit massique de trois combustibles admis par la pile PEMFC durant le cycle «NEDC».

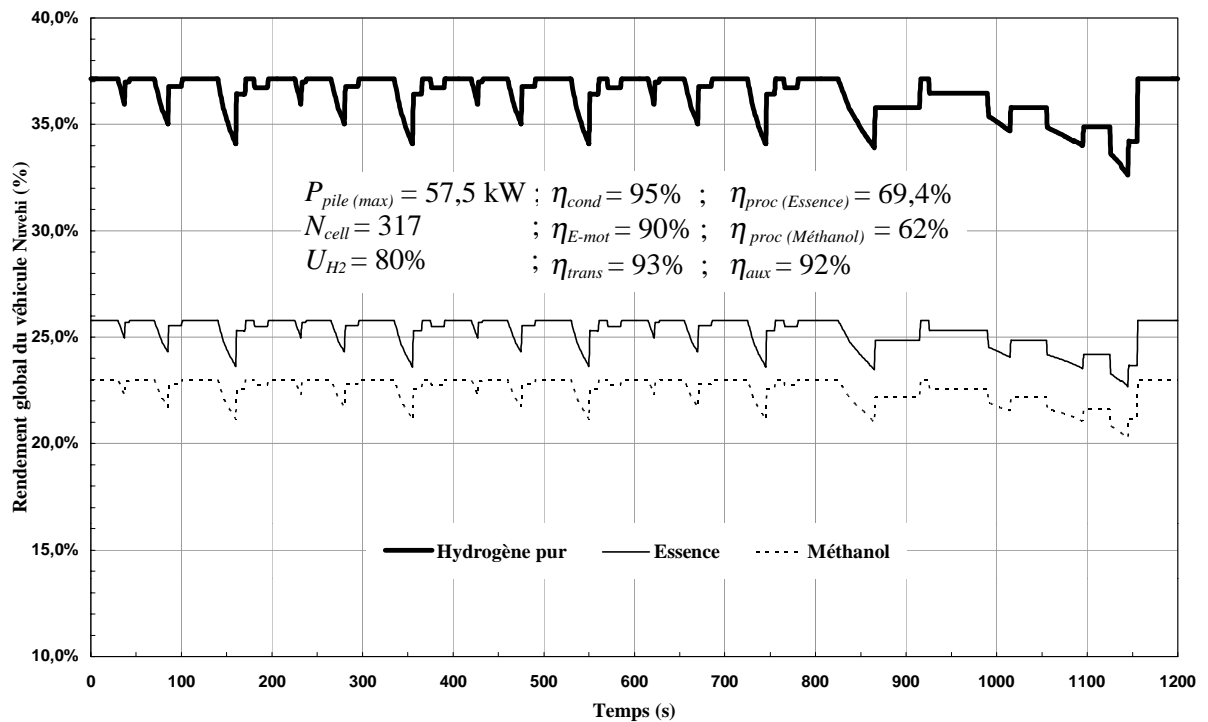


Figure d. 10 : Evolution dans le temps du rendement global de véhicule à pile PEMFC alimentée avec trois types de combustible différents.

REFERENCES

1. « Nouvelles Technologies de l'Energie », Clefs, Revue éditée par le Commissariat à l'Energie Atomique -CEA, n° 44, Hiver 2000-2001.
2. « L'Hydrogène Carburant de Demain », L'Actualité Chimique, Périodique édité par la Société Française de Chimie -SFC, n° 12, Décembre 2001.
3. Lars J. Pettersson, Roger Westerholm, « State of the art of multi-fuel reformers for fuel cell vehicles: problem identification and research needs », International Journal of Hydrogen Energy 26,2001, pp.243-264.
4. « Les Données de Base sur l'Hydrogène », Mémento de l'hydrogène, AFH₂, fiche n° 2.1, Mars 2001.
5. « Inflammabilité et Explosivité de l'Hydrogène », Mémento de l'hydrogène, AFH₂, fiche n° 7.1, Juin 2001.
6. Carrette. L, Friedrich .K. A and Stimming. U, « Fuel Cells: Principles, Types, Fuels, and Applications », ChemPhysChem2000, Wiley-VCH-Verlag GmbH, 2000, pp.163-193.
7. Joan M. Ogden, Margaret M. Steinbugler and Thomas G. Kreutz, « A Comparison of Hydrogen, Methanol and Gasoline as Fuels for Fuel Cell Vehicles : Implications for Vehicle Design and Infrastructure Development », Journal of Power Sources, V.79, 1999 , pp.143-168.
8. Jean Jacques Bezian, « Systèmes de Piles à Combustible pour la Cogénération: état de l'art », Rapport réalisé au Centre d'Energétique de l'Ecole des Mines de Paris, Octobre1998.
9. Farida Lamari Darkrim et Pierre Malbrunot, « Les Nanotubes de Carbone et le Stockage de l'Hydrogène », Article établi au Laboratoire d'Ingénierie des Matériaux et des Hautes Pressions- CNRS.
10. Sharon Thomas and Marcia Zalbowitz , « Fuel Cells - Green Power », Los Alamos Laboratory - New Mexico.
11. « Les Piles à Combustible », Mémento de l'hydrogène, AFH₂, fiche n° 2.3.2.
12. « Rapport de Synthèse sur les Piles à Combustible », Piles à Combustible SOFC, Rapport établi à l'Université de Technologie de Belfort- Montbéliard pour le CNRT –INEVA, Septembre 2002.
13. David Corgier, « Contraintes Techniques des Systèmes Piles à Combustible pour les Applications Autobus », Département Systèmes de Traction Electrique – IRISBUS.

14. Plotkin. S, Santini. D, Vyas. A, Anderson. J, Wang. M, He. J and Bharathan. D, « Hybrid Electric Vehicle Technology Assessment: Methodology, Analytical Issues, and Interim Results », Center for Transportation Research-ANL, October 2001.
15. « 2. Fuel Cell Performance», « 3. Polymer Electrolyte Fuel Cells », « 8. Fuel Cell Systems » et « 9. Sample Calculations », Fuel Cell Handbook, Sixth Edition, Sciences Applications International Corporation DOE/NETL, November 2002.
16. Carrette. L, Friedrich. K.A and Stimming. U, « Fuel Cells Fundamentals and Applications », Fuel Cells 2001, V.1, n° 1, pp.5-39.
17. Brandon M. Eaton, « One Dimensional, Transient Model of Heat, Mass, and Charge Transfer in a Proton Exchange Membrane », Master of science thesis in mechanical engineering, Faculty of the Virginia Polytechnic and State University, May 2001.
18. Tuomas Mennola, «Design and Experimental Characterization of Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells », Licentiate of technology thesis, Helsinki University of Technology, November 2000.
19. Daniel B. Genevey, «Transient Model of Heat, Mass, and Charge Transfer as well as Electrochemistry in the Cathode Catalyst Layer of a PEMFC », Master of science thesis in mechanical engineering, Faculty of the Virginia Polytechnic and State University, December 2001.
20. Andrew Richard Balkin, « Modelling a 500W Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell », Bachelor of engineering thesis, University of Technology- Sydney, June 2002.
21. Matthew M. Mench, Chao-Yang Wang and Stefan T. Thynell, « An Introduction to Fuel Cells and Related Transport Phenomena », Rapport de recherche, The Pennsylvania State University, PA-USA
22. Gerhard Konrad, Marc Sommer, Birgit Loschko, Andreas Schell and Andreas Docter, « System Design for Vehicle Applications », Handbook of Fuel Cells - fundamentals, technology and applications, V.3, 2003.
23. Michael James Ogburn, « Systems Integration, Modeling, and Validation of a Fuel Cell Hybrid Electric Vehicle », Virginia Polytechnic Institute and State University, Master of science in mechanical engineering thesis, May 2000.
24. Kristina Haraldsson and Keith Wipke, « Evaluating PEM Fuel Cell System Models », Article édité au NREL Golden, Colorado.
25. Tobi Quadt, « Fuel's Paradise, How can chemistry find the way out of the energy crisis? », A literature research project- University of Bath, January 2004.
26. Jay T. Pukrushpan, Anna G. Stefanopoulou and Huei Peng, « Modeling and Control for PEM Fuel Cell Stack System », Automative Research Center, University of Michigan, May 2002.

27. Mads Pagh Nielsen, Mads Bang and Inger Bach, « Modelling of Thermodynamic Fuel Cell Systems », Aalborg University Institute of Energy Technology, Denmark.
28. D. Thirumalai and R.E.White, « Steady-state Operation of a Compressor for a Proton Exchange Membrane Fuel Cell System », Journal of Applied Electrochemistry, V.30, 2000, pp.551-559.
29. Jeferson M. Corrêa, Felix A. Farret, Jonas R. Gomes and Marcelo Godoy Simões, « Simulation of Fuel-cell Stacks Using a Computer-controlled Power Rectifier with the purposes of actual High-power Injection Applications », IEEE Transactions On Industry Applications, V.39, n° 4, July/August 2003.
30. Ulf Bossel, « Efficiency of Hydrogen Fuel Cell, Diesel-SOFC-Hybrid and Battery Electric Vehicles », European Fuel Cell Forum, October 2003.
31. Fritz R. Kalhammer, « Polymer electrolytes and the electric vehicle », Solid State Ionics, 135 , 2000, pp.315-323.

Ouvrages consultés et non cités

- a . Matthew J.Fairlie and Paul B.Scott, « Filling up with hydrogen 2000 », Proceedings of the 2000 Hydrogen Program Review, NREL/CP-570-28890.
- b . Sukkee Um, Wang.C.Y and Chen.K.S, « Computational Fluid Dynamics Modeling of Proton Exchange Membrane Fuel Cells », Journal of the Electrochemical Society, V.147,n° 12, 2000, pp.4485-4493.
- c . Ugur Pasaogullari and Chao-Yang Wang, « Computational Fluid Dynamics Modeling of Proton Exchange Membrane Fuel Cells using Fluent », Fluent User Group Meeting-Manchester, 2002.
- d . Jeffrey A. Kolde, Barndad Bahar, Mahlon S.Wilson, Thomas A.Zawodzinski and Shimshon Gottesfeld, « Advanced Composite Polymer Electrolyte Fuel Cell Membranes », Electrochemical Society Proceedings, V.95,n° 23, 1995, pp.193-201.
- e . Paravastu Badrinaraynan, « PEM Fuel Cell Water and Thermal Management: a Methodology to understand Water and Thermal Management in an Automotive Fuel Cell System », Master thesis, University of California- USA, 2001.
- f . Reinhold Wurster, « PEM Fuel Cells in Stationary and Mobile Applications: Pathways to Commercialization », Rapport publié par L- B- Systemtechnik GmbH, June1999.
- g . Candusso. D, Rullière. E and Toutai. E, « A Fuel Cell Hybrid Power Source for a Small Electric Vehicle », Laboratoire d'Electrotechnique de Grenoble, 2001.
- h . Rozier Erik, « Modélisation et Simulation d'une Chaîne de Traction Electrique pour un Véhicule Hybride à Pile à Combustible », Compte rendu élaboré à Irisbus-France, Avril 2002.
- i . Laurencelle. F, Chahine. R, Hamelin. J, Agbossou. K, Fournier. M, Bose. T.K and Laperrière. A, « Characterization of a Ballard MK5-E Proton Exchange Membrane Fuel Cell Stack », Fuel Cells 2001, V.1, n° 1, pp.66-71.
- j . Bourachot. J and Corgier. D, « IRISBUS Fuel Cell Bus Demonstration Program », Département Systèmes de Traction Electrique- IRISBUS- France.
- k . Larry S.Krom, « Renewable Hydrogen for Transportation Study », Final report - Wisconsin Department of Administration, January 1998.
- l . Aymeric Rousseau, Phil Sharer and Rajesh Ahluwalia « Energy Storage System Requirements for Fuel Cell Vehicles », Présentation réalisée à Argonne National Laboratory, Center for Transportation Research; March 2004.

Aux substratums de la science.

« Qu'il me soit permis à travers la fêlure du sibylline de rendre ainsi hommage intime à la mémoire de ceux dont les travaux sont incontournables : physiciens, mathématiciens, chimistes, hydrauliciens, et j'en passe, tellement le génie humain est pluriel et divers dans ses élans les plus spectaculaires.

Timide devant vous, car l'immense halo de vos visions lointaines éclairent scrute le macro et le micro, et nous dévoile, devant cet espace vertigineux, nos vraies et réelles dimensions. Qu'elle me soit permise cette humble intrusion un peu brusque, ces quelques pas imprévus aux frontières de votre royaume intime, où le noble effort sans être reconnu, rémunéré à sa juste valeur par la société des multitudes que nous sommes, à lui seul constitue déjà une volupté, une satisfaction morale jamais égalée par tout ailleurs ».

Extrait de « Esprit Scientifique »
ABDELLI Mohamed-J.S